
MASTERARBEIT

Herr
Theo Pflug

**Untersuchungen zur
ultraschnellen Ellipsometrie von
Laserprozessen**

2017

MASTERARBEIT

Untersuchungen zur ultraschnellen Ellipsometrie von Laserprozessen

Autor:

Theo Pflug

Studiengang:

Lasertechnik

Seminargruppe:

LT14w1-M

Erstprüfer:

Prof. Dr. rer. nat. habil. Alexander Horn

Zweitprüfer:

Markus Olbrich, M.sc.

Mittweida, 2017

Bibliografische Angaben

Pflug, Theo: Untersuchungen zur ultraschnellen Ellipsometrie von Laserprozessen, 73 Seiten, 59 Abbildungen, Hochschule Mittweida, University of Applied Sciences, Fakultät INW

Masterarbeit, 2017

Referat

Diese Arbeit stellt die Konstruktion, den Aufbau und die Kalibrierung eines automatisierten Pump-Probe-Aufbaus dar, mit dem örtlich, zeitlich und spektroskopisch aufgelöste Pump-Probe-Reflektometrie und -Ellipsometrie möglich ist. Zur Validierung werden die Ergebnisse des Pump-Probe-Ellipsometers für Brechzahl, Extinktionskoeffizient und Schichtdicke eines Materials bei Raumtemperatur mit den Ergebnissen eines kommerziellen Ellipsometers verglichen. Erste Messungen der Pump-Probe-Reflektometrie und -Ellipsometrie werden durchgeführt und die Ergebnisse diskutiert.

I. Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	I
Abbildungsverzeichnis	II
Tabellenverzeichnis	III
1 Einleitung	1
2 Stand der Technik	3
3 Theoretische Grundlagen	7
3.1 Polarisation elektromagnetischer Strahlung	7
3.2 Funktionsprinzip eines Ellipsometers mit rotierendem Analysator	9
3.3 Reflexion am Substrat	10
3.4 Reflexion an dünnen Schichten	12
3.5 Dispersionsmodell der Ellipsometrieparameter	14
3.6 Elektronenzustandsdichte in Metallen	17
3.7 Zwei-Temperatur-Modell	20
4 Material und Methoden	23
4.1 Pump-Probe-Ellipsometrie Aufbau	23
4.2 Charakterisierung der Pump- und Probelerstrahlung	25
4.2.1 Räumliche Charakterisierung der Laserstrahlung	25
4.2.2 Strahlengang im Ellipsometer	26
4.2.3 Zeitliche Charakterisierung der Laserstrahlung	30
4.3 Kalibrierung des Ellipsometers	31
4.3.1 Analysator und Polarisator	31
4.3.2 Justage des Ellipsometers	32
4.3.3 Zeitliche Kalibrierung der Verzögerungsstrecke	34
4.4 Charakterisierung der Probenoberflächen	35
5 Ergebnisse und Diskussion	39
5.1 Ellipsometrie bei Raumtemperatur	39
5.2 Schichtdickenbestimmung bei Raumtemperatur	43
5.3 Pump-Probe-Reflektometrie	46

5.4	Pump-Probe-Ellipsometrie	54
6	Zusammenfassung und Ausblick.....	61
	Literaturverzeichnis	65
A	Modelle	69

II. Abbildungsverzeichnis

1.1	Konstruierter Pump-Probe-Aufbau kombiniert mit einem Ellipsometer	1
2.1	Schematische Realteile der Reflexionskoeffizienten und Reflektivitäten der parallelen und senkrechten elektrischen Feldstärkekomponenten der an einer Materialoberfläche reflektierten Strahlung am Beispiel vom Übergang von Luft zu einem idealen Dielektrikum (<i>links</i>) und einem idealen Metall (<i>rechts</i>)	3
2.2	Die Anhand der Reflexionskoeffizienten berechneten Werte für das Amplitudenverhältnis Ψ und die Phasendifferenz Δ der parallelen und senkrechten Komponente der an einer Materialoberfläche reflektierten Strahlung am Beispiel eines idealen Dielektrikums (<i>links</i>) und eines idealen Metalls (<i>rechts</i>)	4
2.3	Einsatzbereiter ellipsometrischer Pump-Probe-Aufbau.....	5
3.1	Polarisationsellipse elliptisch polarisierter Strahlung im x - y Koordinatensystem; γ gibt die Elliptizität der Polarisation an; χ stellt den Winkel zwischen x - y Koordinatensystem und u - v Koordinatensystem der Halbachsen dar [5]	7
3.2	Poincaré-Kugel zur Beschreibung des Polarisationszustandes elektromagnetischer Wellen [6]	8
3.3	Prinzip der Ellipsometrie mit rotierendem Analysator: Die Strahlungsquelle M (siehe Kapitel 4.2) emittierte Strahlung einer definierten Wellenlänge; der Polarisator P polarisiert die Strahlung linear um ϕ relativ zur Einfallsebene der Strahlung zur Probenoberfläche S; die Strahlung propagiert durch ein Medium mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_0 und wird an der Probenoberfläche S mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 reflektiert; der veränderte Polarisationszustand der reflektierten Strahlung wird mit einem Analysator A mit veränderlichem Winkel ϕ und einem Detektor D bestimmt [5]	9
3.4	Beispiel für eine detektierte Intensität der Laserstrahlung in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ und mathematische Approximation einer Cosinusquadratfunktion	10
3.5	Reflexion und Transmission einfallender Strahlung an der Grenzfläche zweier Medien	11
3.6	Reflexion und Transmission einfallender Strahlung im Einschichtmodell; die Superposition aller reflektierten Teilstrahlen ergibt die insgesamt reflektierte Strahlung	12

3.7	Beispiel für Modell und Messdaten für Δ (<i>rechts</i>) und Ψ (<i>links</i>) in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ der Laserstrahlung.....	14
3.8	Schematische Verläufe der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ der Laserstrahlung der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm für Dielektrika, Halbleiter und Metalle	15
3.9	Die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ in Abhängigkeit von Einfallswinkel θ der Laserstrahlung bei der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm von einer Metallschicht auf einem dielektrischen Substrat bei verschiedenen Schichtdicken d	16
3.10	Schematische Darstellung der Periodendicke d_P ; für einen Messwert der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ lösen mehrere Werte d die Gleichung 3.22	17
3.11	Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion bei den Temperaturen $T = 0$ K, $T = 300$ K und $T = 2000$ K für ein freies dreidimensionales Elektronengas konstanter Teilchenzahl N [22]	18
3.12	Zustandsdichte der besetzten Niveaus als Funktion der Energie für ein freies dreidimensionales Elektronengas konstanter Teilchenzahl N bei der Temperatur $T = 0$ K und $T = 2000$ K [22]	19
3.13	Zustandsdichtverteilung für Gold in Abhängigkeit der Energie bei $T = 300$ K, $T = 5000$ K und $T = 50000$ K [18, 22]; eine Temperatur von $T = 50000$ K beeinflusst die Zustandsdichteverteilung aller Energieniveaus, auch weit oberhalb der Fermikante entstehen freie Zustände.....	20
3.14	<i>O.l.</i> : Die Fermiverteilung eines idealen Metalls vor der Anregung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung; <i>o.r.</i> : Fermiverteilung während der Anregung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung, Elektronen werden aus dem Niveau unterhalb der Fermienergie in ein Niveau oberhalb der Fermienergie angeregt; <i>u.l.</i> : die Elektronen thermalisieren nach $t \geq \tau_e$ und eine Fermiverteilung $T_e > T_l$ entsteht; <i>u.r.</i> : Elektronensystem und Phononensystem sind nach $t \geq \tau_{th}$ im Gleichgewicht mit $T_e = T_l$ [15, 22]	21

3.15	<i>Links</i> : schematische Darstellung der Elektronentemperatur T_e und der Phononentemperatur T_l nach Anregung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung der Pulsdauer $\tau_{H,Puls} = 35$ fs, die Bereiche konstanter Phononentemperatur entstehen aufgrund der zur Phasenumwandlung nötigen Aufnahme von Wärme; <i>rechts</i> : schematische Darstellung der Elektronentemperatur mit besserer zeitlicher Auflösung, die Elektronentemperatur folgt dem zeitlichen Verlauf der steigenden Flanke der Pulsenergie [15, 18, 23].....	22
4.1	Versuchsaufbau: (1) Laser emittiert Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda = 800$ nm; (2) Strahlteiler; (3) Spiegel; (4) Verzögerungsstrecke; (5) optisch parametrischer Verstärker; (6) Probelerstrahlung (grün) mit $\lambda_{Probe} = 515$ nm; (7) Pumpelerstrahlung (rot) mit $\lambda_{Pump} = 800$ nm; (8) x - y -Positionieranlage für die Probe; (9) z -Achse zur Fokuspositionierung; (10) Spindel um Einfallswinkel θ der Strahlung auf die Probenoberfläche zu variieren; (11) Ellipsometer (siehe Kapitel 4.2); (12) extra dünne Linse für ultrakurz gepulste Laserstrahlung mit der Brennweite $f_{Pump} = 150$ mm fokussiert die Pumpelerstrahlung auf die Probenoberfläche.....	24
4.2	<i>Links</i> : räumliche Intensitätsverteilung der Pumpelerstrahlung nach dem Teleskopaufbau mit $\lambda_{Pump} = 800$ nm; <i>rechts</i> : räumliche Intensitätsverteilung der Probelerstrahlung mit $\lambda_{Probe} = 515$ nm, die Intensitätsverteilungen sind auf das Intensitätsmaximum normiert	25
4.3	Normierte räumliche Intensitätsverteilung der Probelerstrahlung der Laserdiode mit $\lambda_{Probe} = 532$ nm	26
4.4	Strahlengang der Probelerstrahlung: (1) dünne Linsen für ultrakurze gepulste Laserstrahlung dienen zur Strahlformung und bilden die Probelerstrahlung mit $d_y = 200$ μ m auf der Probenoberfläche ab; (2) $\frac{\lambda}{2}$ -Platte dreht die Polarisation der Laserstrahlung beliebig; (3) Polarisator polarisiert die Laserstrahlung um 45° linear mit einem Kontrastverhältnis von $10^6 : 1$ und regelt mit Hilfe der $\frac{\lambda}{2}$ -Platte die Leistung der Probelerstrahlung; (4) Objektiv mit Brennweite 10 mm und einem Arbeitsabstand von 25,5 mm; (5) Laser-Line Bandpassfilter auf 515 nm zentriert und rotierender Analysator mit einem Kontrastverhältnis von $10^6 : 1$; (6) Tubuslinse mit einer Bildweite von 200 mm; (7) detektierende Kamera mit einer Auflösung von 1024 x 1024 Pixeln.....	27

4.5	Strahlenoptisch simulierter Strahlengang der Probelerstrahlung durch den rechten Arm des Ellipsometers	28
4.6	<i>Rechts</i> : simuliertes und ideales Testbild mit 4 unterschiedlichen Strukturen in der Gegenstandsebene G; <i>links</i> : Vergleich der resultierenden Testbilder in der Bildebene B mit und ohne Abbildungsfehler	28
4.7	<i>Oben</i> : strahlenoptische Simulation des Strahlengangs durch Objektiv (4), Analysator (5) und Tubuslinse (6) zum Detektorchip der Kamera (7) im linken Arm des Ellipsometers; mit der numerischen Apertur des Objektivs (4) von $NA = 0,4$ und der Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ ergibt sich ein maximaler objektseitiger Öffnungswinkel der an der Probenoberfläche reflektierten Strahlung von $23,6^\circ$; Analysator (5) mit der Apertur von 10 mm und Tubuslinse (6) mit der Apertur von 30 mm beschneiden die reflektierte Probelerstrahlung nicht; die Probelerstrahlung wird nahezu verlustfrei auf dem Kamerachip (7) abgebildet; <i>unten</i> : wellenoptische Simulation des Strahlengangs durch Objektiv (4), Analysator (5) und Tubuslinse (6) zum Detektorchip der Kamera (7) im linken Arm des Ellipsometers; da im abbildenden System ein Zwischenfokus erzeugt wird, müssen die Zerstörschwellen der optischen Bauelemente und die Intensität der Probestrahlung beachtet werden	29
4.8	Zeitabhängige normierte gemessene Intensitätsverteilung und Phasenlage der Pumplaserstrahlung; die gemessene Intensitätsverteilung ähnelt stark der mathematisch approximierten Gaußverteilung	30
4.9	Gemessenes Rausch- und Intensitätsverhältnis der Kamera: <i>o.l.</i> : Hintergrundmessung der Kamera ohne Probelerstrahlung; <i>o.r.</i> : Messung der Kamera mit Analysatorwinkel $\phi = 45^\circ$; <i>u.l.</i> : Analysator um 90° zur Polarisation der reflektierten Probelerstrahlung gedreht; <i>u.r.</i> : Differenz der Messungen mit um 90° gedrehten Analysator und Hintergrundmessung, die restlichen Counts entstehen durch thermisches und elektronisches Rauschen und ergeben bei einer detektierter Strahlung mit über 30000 Counts einen Fehler von weniger als 1 %	32
4.10	Kalibrierung des Strahlengangs innerhalb des Ellipsometers mit Wasser als Probenmaterial	33

4.11	<i>Links</i> : erfolgreiche Ausrichtung der Probelerstrahlung; die Probelerstrahlung trifft mittig auf den Kamerachip und wird nicht im Strahlengang beschnitten; <i>rechts</i> : fehlerhaftes Ausrichten der Probelerstrahlung; die Probelerstrahlung trifft mittig auf den Kamerachip, wird aber oben rechts von der Analysatorfassung beschnitten, da die Probelerstrahlung schräg durch das Abbildende System verläuft	33
4.12	Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ einer Goldoberfläche während der Anregung der Probenoberfläche durch Pumplaserstrahlung der Fluenz $H_0 = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ in Abhängigkeit von der Zeit mit Zeitschritten von $\Delta t = 0,66 \text{ ps}$; der Zeitpunkt des ersten Auftretens einer Reflektivitätsänderung wird als zeitlicher Nullpunkt festgelegt	34
4.13	Oberflächen einer mit SiO_2 beschichteten Silber- (<i>o.l.</i>) und Goldprobe (<i>u.l.</i>) und einer unbeschichteten Gold- (<i>m.o.</i>), PMMA- (<i>m.u.</i>) und Siliziumprobe (<i>r.o.</i> , Lichtmikroskopie) 35	
4.14	<i>Links</i> : erzeugte Struktur bei einer Fluenz der Pumplaserstrahlung zwischen den Schwellfluenzen von gentle und strong Abtrag mit $H_0 = 2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$; <i>rechts</i> : erzeugte Struktur bei einer Fluenz der Pumplaserstrahlung größer der Schwellfluenz für strong Abtrag mit $H_0 = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$	36
4.15	Quadrat des Durchmessers der mittels Pumplaserstrahlung erzeugten Strukturen in Abhängigkeit der Fluenz der Pumplaserstrahlung für gentle und strong Abtrag	37
5.1	Normierte detektierte Intensitäten (Kreuz) der reflektierten Probelerstrahlung mit $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ und Approximation (Linie) einer Cosinusquadratfunktion für Au, Si und PMMA	39
5.2	Vergleich der mit dem kommerziellen und dem Pump-Probe-Ellipsometer gemessenen Werte für n und k mit verschiedenen Literaturangaben im Wellenlängenbereich $350 \text{ nm} \leq \lambda_{\text{Probe}} \leq 800 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung	41
5.3	<i>O.l.</i> : Bild einer strukturierten Goldoberfläche, rechts im Bild ist schwarz der Rand der Probenoberfläche zu erkennen; <i>o.r.</i> : Bild nach 2x Binning; <i>u.l.</i> : Verteilung der ortsabhängigen Brechzahl n ; <i>u.r.</i> : Verteilung des ortsabhängigen Extinktionskoeffizienten k	41
5.4	Vergrößert dargestellte räumliche Verteilungen der Brechzahl n und Extinktionskoeffizient k von mit unterschiedlichen Fluenzen erzeugten Strukturen	42

5.5	Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe (Kreis) und kommerziellem Ellispometer (Kreuz) bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm für eine SiO_2 -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat	43
5.6	Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe (Kreis) und kommerziellem Ellispometer (Kreuz) bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 532$ nm für eine SiO_2 -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat	44
5.7	Ein Messwert für die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ hat mehrere Schichtdicken d im Abstand der Periodendicke d_p als Lösung; kann die Schichtdicke d abgeschätzt werden, reicht die Messung von Δ und Ψ unter einem Einfallswinkel θ und einer Wellenlänge λ_{Probe} der Probelerstrahlung zur Schichtdickenbestimmung aus	46
5.8	<i>O.l.</i> : erste gemessene Intensitätsverteilung der Reflektometrie ohne Reflektivitätsänderung; <i>o.r.</i> : Intensitätsverteilung einer Reflektometriemessung mit Reflektivitätsänderung; der gesamte Bereich unter der weißen Markierung wird für die Normierung der Bildhelligkeit verwendet; <i>u.l.</i> : Differenz zweier Messungen ohne Reflektivitätsänderung; <i>u.r.</i> : Differenz einer Aufnahme mit Reflektivitätsänderung und einer Aufnahme ohne Reflektivitätsänderung zur besseren Darstellung der Wirkzone der Pumplaserstrahlung	47
5.9	Relative Reflektivitätsänderungen der Probelerstrahlung bei den Wellenlängen 480 nm und 515 nm einer Goldoberfläche während der Bestrahlung mit Pumplaserstrahlung der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$	48
5.10	Anhand der Dispersionsverläufe von n und k [31] über die Fresnel-Gleichungen berechnete Reflektivität als Funktion der Wellenlänge für Gold	49

- 5.11 Schematische Darstellung der höchsten Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen des d - und s -Bandes und die dazugehörige Zustandsdichteverteilung (DOS) bei den Temperaturen $T = 0$ K und $T = 2000$ K; bei erhöhter Temperatur verbreitert sich die Fermikante der Zustandsdichteverteilung des s -Bandes, oberhalb der Fermienergie werden freie Zustände mit Elektronen (Dreiecke) besetzt und unterhalb der Fermienergie entstehen freie Zustände (Kreise); durch Photonen angeregte Elektronen ändern näherungsweise nicht ihren Impuls $\hbar \cdot k$ und können nur entsprechen der Pfeile ein Elektron aus dem d -Band in einen freien Zustand im s -Band anregen, dabei sind die wahrscheinlicheren Übergänge braun dargestellt und die unwahrscheinlicheren Übergänge grau 50
- 5.12 Die relative Reflektivitätsänderung einer unbeschichteten Goldoberfläche im Zeitbereich $-20 \text{ ps} < t < 120 \text{ ps}$ während der Bestrahlung mit Pumplaserstrahlung der Pulsdauer $\tau_{\text{H,Pump}} = 34 \text{ fs}$ und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$, $H_0 = 160 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 60 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ und $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$; die Wellenlänge der Probelaserstrahlung beträgt $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ 51
- 5.13 *Links*: simulierte Elektronentemperatur T_e von Gold in Abhängigkeit von der Zeit nach Anregung durch Pumplaserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$ und der Pulsdauer $\tau = 34 \text{ fs}$ mit Fluenzen unterhalb des gentle Regimes, zwischen gentle und strong Regime und oberhalb des strong Regimes; *rechts*: simulierte Phononentemperatur T_l von Gold in Abhängigkeit von der Zeit nach Anregung durch Pumplaserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$ und der Pulsdauer $\tau = 34 \text{ fs}$ mit Fluenzen unterhalb des gentle Regimes, zwischen gentle und strong Regime und oberhalb des strong Regimes [23] 52
- 5.14 Auf das Maximum normierte gemessene relative Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ für $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ mit $\Delta t = 1,5 \text{ ps}$ und simulierte Elektronentemperatur T_e während Anregung der Goldoberfläche mit Pumplaserstrahlung mit der Fluenz $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ in Abhängigkeit von der Zeit im Zeitbereich $-3 \text{ ps} < t < 4 \text{ ps}$ 53

- 5.15 *Links*: Intensitätsverteilung der Probenoberfläche bei einem Analysatorwinkel von $\phi = 50^\circ$; der Bereich unterhalb der weißen Linie dient zur Bestimmung der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ der Goldoberfläche ohne Anregung durch Pumpaserstrahlung; der Bereich $35 \mu\text{m} < y < 40 \mu\text{m}$ und $35 \mu\text{m} < x < 45 \mu\text{m}$ (rot) wird mit Pumpaserstrahlung angeregt; *rechts*: Differenz der gemessenen Rohdaten mit Anregung und ohne Anregung durch Pumpstrahlung zur besseren Darstellung des Wechselwirkungsbereichs der Pumpaserstrahlung 54
- 5.16 Gemessene Werte der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ über einen Zeitbereich von $-2 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ relativ zur anregenden Pumpaserstrahlung bei den Einfallswinkeln θ von 56° , 60° , und 65° , der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ der Pumpaserstrahlung; die durchgezogenen Linien stellen die gemessenen Werte für Δ und Ψ ohne Einwirkung der Pumpaserstrahlung dar 55
- 5.17 Berechnete Werte für n und k über einen Zeitbereich von $-2 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ relativ zur anregenden Pumpaserstrahlung bei den Einfallswinkeln θ von 56° , 60° , und 65° , der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ der Pumpaserstrahlung; die durchgezogenen Linien stellen die Werte für n und k ohne Einwirkung der Pumpaserstrahlung dar 56
- 5.18 Vergleich der gemessenen relativen Reflektivitätsänderung nach Bestrahlung der Probenoberfläche mit der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ der Pumpaserstrahlung und den aus n und k der Pump-Probe-Ellipsometrie berechneten relativen Reflektivitätsänderungen bei der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung . 57
- 5.19 Simulierte Phononentemperatur T_l von Gold in Abhängigkeit von der Zeit nach Anregung durch Pumpaserstrahlung der Pulsdauer $\tau = 34 \text{ fs}$ mit der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$; die Schmelztemperatur von Gold von 1334 K (grün) ist nach $t = 140 \text{ fs}$ erreicht und nach $t = 400 \text{ fs}$ überschritten; die Verdampfungstemperatur von Gold von 3100 K (rot) ist nach 600 fs erreicht, wird aber nicht überschritten [23] .. 58
- 5.20 Einschichtmodell aus Umgebungsmedium mit \tilde{n}_0 , einer Schmelzfront mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 und der Schichtdicke d und einem Substrat mit \tilde{n}_2 [3] 58

5.21	Berechnete Brechzahl n (<i>o.l.</i>), Extinktionskoeffizient k (<i>o.r.</i>) und Schichtdicke d (<i>u.l.</i>) der Schmelzfront auf der Goldoberfläche nach Anregung durch Pumpplaserstrahlung mit der Pulsdauer $\tau_{H,Pump} = 34$ fs und der Fluenz von $H_0 = 80 \% \cdot H_{th,gentle} = 1 \frac{J}{cm^2} \dots$	59
A.1	Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe und kommerziellem Ellispometer bei einer Wel- lenlänge von $\lambda_{Probe} = 515$ nm für eine SiO ₂ -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat	69
A.2	Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe und kommerziellem Ellispometer bei einer Wel- lenlänge von $\lambda_{Probe} = 532$ nm für eine SiO ₂ -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat	70
A.3	Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ von Gold in Abhän- gigkeit vom Einfallswinkel θ zu unterschiedlichen Zeiten t bei Anregung mit Pumppla- serstrahlung der Fluenz $H_{Pump} = 80 \% \cdot H_{th,gentle} = 1 \frac{J}{cm^2} \dots$	71
A.4	berechnete Brechzahl n (<i>o.l.</i>), Extinktionskoeffizient k (<i>o.r.</i>) und Schichtdicke d (<i>u.l.</i>) der Schmelzfront auf der Goldoberfläche mit dazugehörigen Standardabweichungen nach Anregung durch Pumpplaserstrahlung mit der Pulsdauer $\tau_{H,Pump} = 34$ fs und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{th,gentle} = 1 \frac{J}{cm^2} \dots$	72

III. Tabellenverzeichnis

4.1 Designwellenlängenbereiche der einzelnen optischen Bauelemente	30
4.2 Durchstrahltes Material und dazugehörige Gruppengeschwindigkeitsdispersionen von Pump- und Probelerstrahlung	31
4.3 gemessene Rauheiten der verwendeten Probenoberflächen	36
5.1 Vergleich der mit dem Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer bestimmten Brech- zahlen n und Extinktionskoeffizienten k mit Literaturwerten bei der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} =$ 515 nm der Probelerstrahlung	40
5.2 Vergleich der mit dem Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer bestimmten Brech- zahlen n und Extinktionskoeffizienten k mit Literaturwerten bei der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} =$ 532 nm der Probelerstrahlung	40
5.3 Absolute und relative Abweichung der Messwerte von Δ und Ψ von Pump-Probe und kommerziellem Ellipsometer bei den Wellenlängen $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$	44
5.4 Berechnete Schichtdicken d und Brechzahlen n für SiO_2 auf Silber, Gold und Silizium bei den Wellenlängen $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$	45

1 Einleitung

Das Verständnis der Dynamik der Materialbearbeitung mittels ultrakurz gepulster Laserstrahlung wird durch steigende Ansprüche der Mikrotechnik an Qualität und Produktivität immer wichtiger [1]. Um dieses Verständnis zu erhöhen, ist eine zeitlich aufgelöste Darstellung der Prozesse während und nach der Bestrahlung eines Materials notwendig. Mit Kenntnis der zu bestimmten Zeiten stattfindenden Prozesse, wie Brechzahländerung, Schmelzen oder Abtragen, und deren Ursachen sollen die Eigenschaften der mittels ultrakurz gepulster Laserstrahlung erzeugten Strukturen, wie Rauheit, Tiefe etc. von vorn herein abgeschätzt und so die gewünschten Strukturergebnisse gezielt erreicht werden können.

Die R und der komplexe Brechungsindex \tilde{n} sind Größen, die mit großer zeitlicher und örtlicher Auflösung gemessen werden können, indem ein Pump-Probe-Aufbau [2] mit einem Ellipsometer bzw. Reflektometer kombiniert wird. Über die zeitaufgelöste relative Reflektivitätsänderung und den komplexen Brechungsindex während und nach der Bestrahlung mit Laserstrahlung kann auf weitere Prozessparameter, wie die zeitabhängige Elektronen- und Phonontemperatur oder die Entstehung und Ausbreitung einer Schmelze des Materials geschlossen werden.

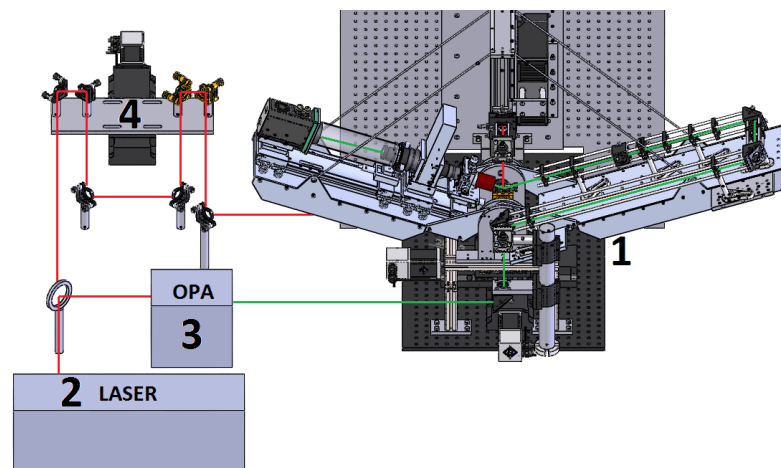


Abbildung 1.1: Konstruierter Pump-Probe-Aufbau kombiniert mit einem Ellipsometer

Diese Arbeit beschreibt die Konstruktion, siehe Abbildung 1.1, den Aufbau und die Kalibrierung eines automatisierten Pump-Probe-Aufbaus, welcher mittels ultrakurzgepulster Laserstrahlung örtlich, zeitlich und spektroskopisch aufgelöste Reflektometrie und Ellipsometrie unter verschiedenen Einfallswinkeln der Strahlung ermöglicht und zeigt erste Ergebnisse von Pump-Probe-Messungen. Zusätzlich kann mit diesem Aufbau Brewsterwinkelmikroskopie und Schattenphotographie durchgeführt werden, worauf in dieser Arbeit jedoch nicht eingegangen wird.

Das Ellipsometer (1) basiert auf der Methode des rotierenden Analysators zur Bestimmung der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ und der daraus folgenden Berechnung von Brechzahl n , Extinktionskoeffizient k und einer Schichtdicke d des Materials [3–5, 7]. Das Ellipsometer kann durch Entfernen des Analysators in ein Reflektometer umgebaut werden. Mittels Reflektometrie kann die durch Bestrahlung hervorgerufene zeitabhängige relative Reflektivitätsänderung bestimmt werden. Die verwendete ultrakurz gepulste Laserstrahlung (2) wird in Pumplaserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$ und der Pulsdauer $\tau_{\text{H,Pump}} = 34 \text{ fs}$ zur Anregung des Materials und Probelaserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und der Pulsdauer $\tau_{\text{H,Probe}} = 180 \text{ fs}$ zur Detektion der hervorgerufenen Materialeigenschaftsänderungen geteilt. Die Frequenzkonversion erfolgt mittels eines optisch parametrischen Verstärker (OPA, 3). Durch eine motorisierte Verzögerungsstrecke (4) können die optischen Weglängen von Pump- und Probelaserstrahlung relativ zueinander variiert werden.

Die Kalibrierung der Azimutwinkel von Polarisator und Analysator, Ellipsometerarme und des Strahlengangs erfolgt unter Ausnutzung des Brewsterwinkels von PMMA und einer horizontal ausgerichteten Wasseroberfläche und wird in Kapitel 4.3 beschrieben. Die mit diesem Pump-Probe-Ellipsometer bestimmten Ellipsometrieparameter Δ und Ψ und die daraus berechneten Werte für n , k und d für das Dielektrikum PMMA, dem Halbleiter Si und dem Übergangsmetal Gold werden zur Validierung mit den gemessenen Daten eines kommerziellen Ellipsometers (nanofilm_ep4, Fa. Accurion) verglichen.

Nach der Konstruktion und Kalibrierung des experimentellen Pump-Probe-Aufbaus werden erste Messungen der Pump-Probe-Reflektometrie in Kapitel 5.3 bei verschiedenen Wellenlängen der Probelaserstrahlung von $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 480 \text{ nm}$ und Fluenzen der Pumplaserstrahlung unterhalb der Abtragsschwelle, zwischen gentle und strong Abtrag und über der strong Abtragsschwelle, sowie erste Messungen des zeitaufgelösten komplexen Brechungsindex in Kapitel 5.4 bei einer Wellenlänge der Probelaserstrahlung von 515 nm mittels Pump-Probe-Ellipsometrie an einer Goldoberfläche durchgeführt. Anhand der mittels Pump-Probe-Ellipsometrie gemessenen zeitaufgelösten Ellipsometrieparameter Δ und Ψ wird versucht die Ausbreitung der Schmelzfront und die Dynamik von n und k der durch Pumplaserstrahlung angeregten Goldoberfläche zu modellieren.

2 Stand der Technik

Die Ellipsometrie ist ein Messverfahren zur Bestimmung des komplexen Brechungsindex $\tilde{n} = n + i \cdot k$ eines Materials, bestehend aus Brechungsindex n und Extinktionskoeffizient k . Zur Bestimmung von n und k eines Materials wird die Änderung des Polarisationszustandes von an der Oberfläche reflektierten Strahlung gemessen. Die Reflektivität der parallelen und senkrechten Komponenten der reflektierten Strahlung in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ der Strahlung wird durch die Reflexionskoeffizienten r_p und r_s beschrieben. Das Betragsquadrat der Reflexionskoeffizienten ergibt die Reflektivität [3, 5, 8].

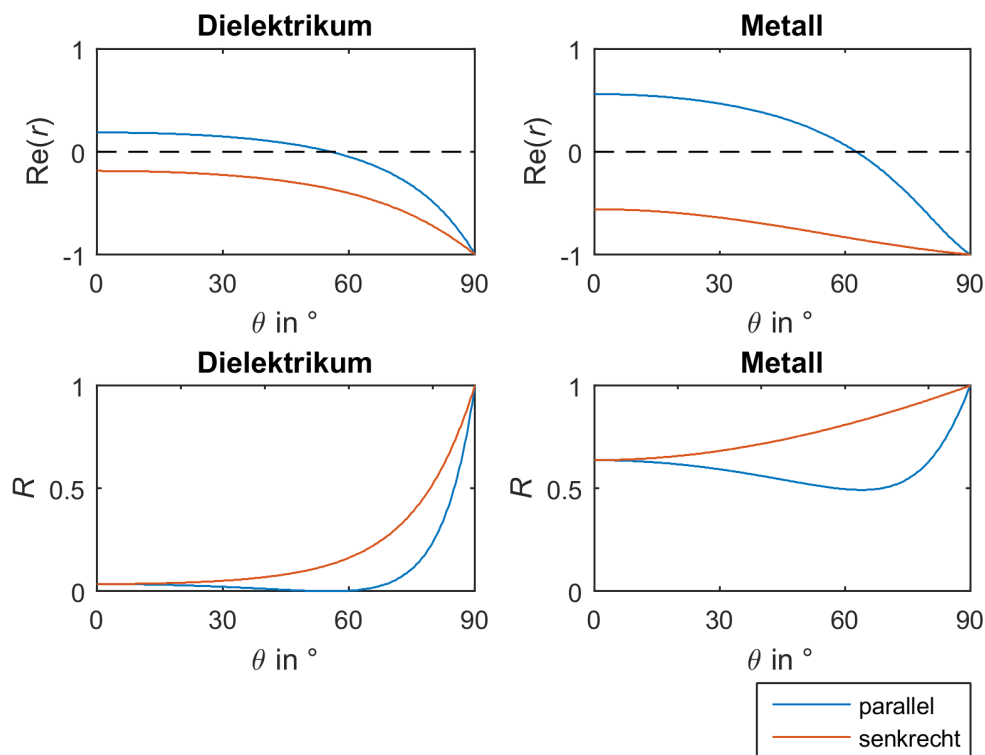


Abbildung 2.1: Schematische Realteile der Reflexionskoeffizienten und Reflektivitäten der parallelen und senkrechten elektrischen Feldstärkekomponenten der an einer Materialoberfläche reflektierten Strahlung am Beispiel vom Übergang von Luft zu einem idealen Dielektrikum (*links*) und einem idealen Metall (*rechts*)

Ein Beispiel für die Realteile der Reflexionskoeffizienten und die Reflektivitäten für ein ideales Metall und ein ideales Dielektrikum ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Da sich die Reflexionskoeffizienten der parallelen und der senkrechten elektrischen Feldstärkekomponente der Strahlung unterscheiden, ist die reflektierte Strahlung im Allgemeinen elliptisch polarisiert, wovon sich der Name Ellipsometrie ableitet. Der Erfinder des Messprinzips war Paul Drude [3], hauptsächlich bekannt durch das Drude Modell zur Beschreibung der optischen Eigenschaften von Metallen, welcher erste ellipsometri-

sche Messungen 1887 mittels Nullellipsometrie durchführte. Der Versuchsaufbau bei der Nullellipsometrie besteht allgemein aus einem Polarisator, einem Kompensator und einem Analysator. Der Kompensator, welcher aus einer $\frac{\lambda}{4}$ -Platte besteht, wird auf einen festen Azimutwinkel gegenüber der Einfallsebene eingestellt, in den meisten Anwendungsfällen 45° [7]. Die Strahlung wird mit einem Polarisator um den Polarisatorwinkel φ relativ zur Einfallsebene linear polarisiert und durch den Kompensator so elliptisch polarisiert, dass die Strahlung nach Reflexion an der Materialoberfläche wieder linear polarisiert ist. Der Analysator wird um den Analysatorwinkel ϕ senkrecht zur Polarisation der reflektierten Strahlung gestellt, sodass idealerweise keine reflektierte Strahlung von einem Sensor detektiert wird. Der Azimutwinkel des Analysators ϕ entspricht dann dem Betrag des komplexen Verhältnisses von r_p und r_s . Der zweifache Azimutwinkel des Polarisators addiert mit 90° ergibt die Phasendifferenz von r_p und r_s . Die beiden direkt messbaren Azimutwinkel für Polarisator und Analysator der Nullellipsometrie werden als die Ellipsometrieparameter Phasendifferenz Δ und Amplitudenverhältnis Ψ mit

$$\Delta = 2 \cdot \varphi \pm 90^\circ \quad \text{und} \quad \Psi = |\phi| \quad (2.1)$$

festgelegt.

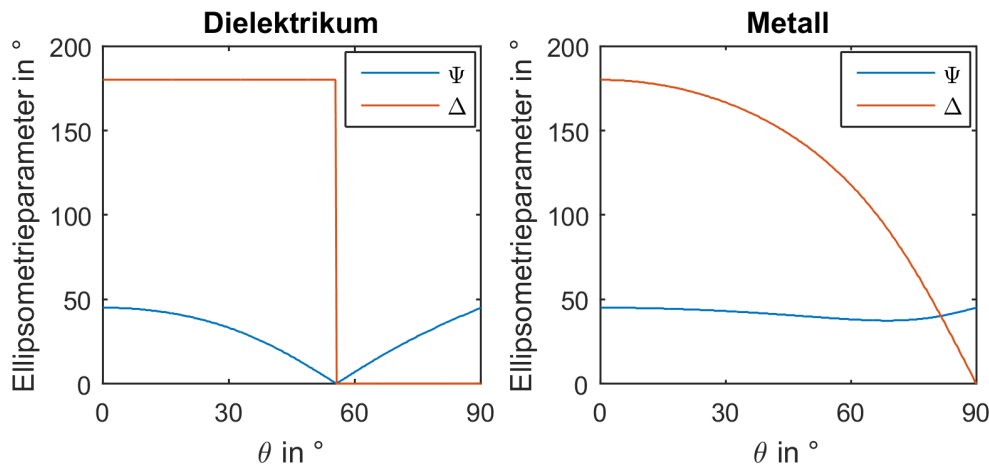


Abbildung 2.2: Die Anhand der Reflexionskoeffizienten berechneten Werte für das Amplitudenverhältnis Ψ und die Phasendifferenz Δ der parallelen und senkrechten Komponente der an einer Materialoberfläche reflektierten Strahlung am Beispiel eines idealen Dielektrikums (*links*) und eines idealen Metalls (*rechts*)

Die Anhand der Reflexionskoeffizienten in Abbildung 2.1 berechneten Ellipsometrieparameter Δ und Ψ sind in Abbildung 2.2 dargestellt. Beim idealen Dielektrikum ist die Phasendifferenz um 180° von Δ aufgrund des wechselnden Vorzeichens von r_p und das Minimum von Ψ beim Brewsterwinkel direkt ablesbar, da der Brechungsindex komplett real ist. Mittels Ellipsometrie kann zusätzlich zu den dielektrischen Eigenschaften auch die Schichtdicke d einer dünnen Schicht auf einem Substrat bestimmt werden. Da aufgrund des optischen Wegs der Strahlung durch eine dünne Schicht hindurch mehrere Lösungen für n , k und d anhand einer Messung von Δ und Ψ möglich sind, müssen Δ und Ψ bei mehreren Einfallswinkeln θ oder Wellenlängen λ (spektroskopische Ellip-

sometrie) der einfallenden Strahlung auf die Materialoberfläche gemessen werden. Die Betrachtung von Δ und Ψ hat sich bis heute auch in anderen Ellipsometrieverfahren, wie Ellipsometrie mit rotierendem Analysator oder Ellipsometrie der Minimumsuche, durchgesetzt [7]. Die Nullellipsometrie bietet den Vorteil, dass die Ellipsometrieparameter direkt ablesbar sind, sehr genau bestimmt werden können und kaum fehleranfällig durch Hintergrundstrahlung sind, da sich das gesuchte Intensitätsminimum einfach einstellen lässt. Dafür ist die Nullellipsometrie zeitaufwendig. Die Ellipsometriemethode des rotierenden Analysator ist dagegen schnell und der experimentelle Aufbau ist weniger komplex, da nur der Analysator einen veränderlichen Winkel besitzt. Jedoch ist diese Methode bei kleinen Elliptizitäten der detektierten Strahlung fehleranfälliger [3, 7, 9]. Aufgrund des einfacheren Aufbaus eines Ellipsometers mit rotierendem Analysator werden alle ellipsometrischen Messungen dieser Arbeit ausschließlich mit dieser Methode durchgeführt und dessen Prinzip in Kapitel 3.2 genauer beschrieben.

Wird abbildende Ellipsometrie mit einem Pump-Probe-Aufbau kombiniert, kann der Brechungsindex n und der Extinktionskoeffizient k zeit- und orts aufgelöst bestimmt werden. Das Pump-Probe-Verfahren wird mit gepulster Strahlung realisiert, wobei die größte zeitliche Auflösung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung erreicht wird. Dabei wird die Materialoberfläche durch sogenannte Pumplaserstrahlung angeregt und die durch die Pumplaserstrahlung hervorgerufene Änderung der optischen Eigenschaften des Materials mit sogenannter Probelaserstrahlung detektiert. In der Literatur werden die resultierenden Ellipsometrieparameter Δ und Ψ meist unter einem Einfallswinkel θ und einer Wellenlänge λ mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung bestimmt und n und k daraus ermittelt [11, 12]. Andere Ansätze beschäftigen sich mit der Reflektometrie mit parallel und senkrecht polarisierter Laserstrahlung [13, 15] oder der spektroskopischen Ellipsometrie [14].

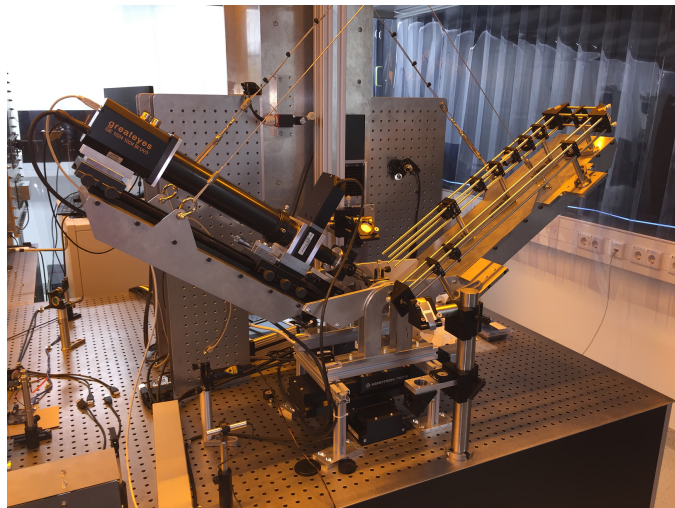


Abbildung 2.3: Einsatzbereiter ellipsometrischer Pump-Probe-Aufbau

Diese Arbeit beschreibt die Konstruktion, den Aufbau und die Kalibrierung eines automatisierten Aufbaus, siehe Abbildung 2.3, mit dem orts aufgelöste spektroskopische

ultraschnelle Pump-Probe-Ellipsometrie mit verstellbarem Einfallswinkel θ der Probelaaserstrahlung, ultraschnelle Reflektometrie, Schattenphotographie und Brewsterwinkel-mikroskopie möglich sind. Die verwendete ultrakurz gepulste Pumplaserstrahlung hat eine Pulsdauer von etwa $\tau_H = 34$ fs. Durch die Bestimmung der zeitaufgelösten Ellipsometrieparameter Δ und Ψ bei unterschiedlichen Wellenlängen λ_{Probe} und Einfallswinkeln θ der Probelaaserstrahlung ist ein besseres Verständnis und eine Modellierung, siehe Kapitel 3.5, des Anregeprozesses durch ultrakurz gepulste Laserstrahlung möglich.

3 Theoretische Grundlagen

3.1 Polarisation elektromagnetischer Strahlung

Elektromagnetische Strahlung ist eine transversale elektromagnetische Welle, deren elektrische Feldstärkeverteilung durch

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \cdot e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \quad , \quad (3.1)$$

mit der Amplitude \vec{E}_0 , der Kreisfrequenz ω , dem Kreiswellenvektor \vec{k} und dem Ortsvektor \vec{r} des elektrischen Feldes, beschrieben wird. Die magnetische Induktion \vec{B} steht stets senkrecht zur elektrischen Feldstärke und kann über die Maxwell-Gleichungen berechnet werden, sodass Gleichung 3.1 zur Beschreibung genügt [3]. Breitet sich die elektromagnetische Welle in z -Richtung aus, so kann das elektrische Feld durch die Linearkombination

$$\vec{E} = \vec{E}_x + \vec{E}_y \quad (3.2)$$

beschrieben werden. \vec{E}_x und \vec{E}_y mit dem Phasenunterschied δ sind durch

$$\vec{E}_x = \vec{E}_{x,0} \cdot e^{i(\omega t - kz)} \quad \text{und} \quad (3.3)$$

$$\vec{E}_y = \vec{E}_{y,0} \cdot e^{i(\omega t - kz + \delta)} \quad (3.4)$$

gegeben [3, 5, 7]. Der Polarisationszustand einer elektromagnetischen Welle kann über eine Polarisationsellipse, siehe Abbildung 3.1, dargestellt werden, wobei γ die Elliptizität und χ den Winkel zwischen großer Ellipsenhalbachse und Koordinatensystem bilden.

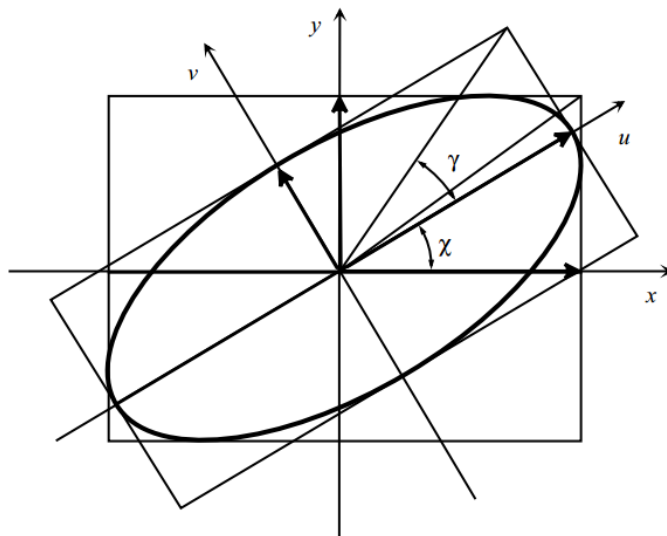


Abbildung 3.1: Polarisationsellipse elliptisch polarisierter Strahlung im x - y Koordinatensystem; γ gibt die Elliptizität der Polarisation an; χ stellt den Winkel zwischen x - y Koordinatensystem und u - v Koordinatensystem der Halbachsen dar [5]

Anhand von γ und χ kann die Polarisation der Strahlung über die Stokesparameter S_0 , S_1 , S_2 und S_3 charakterisiert werden. Die einzelnen Stokesparameter berechnen sich nach

$$S_0 = E_x^2 + E_y^2 = I_{\text{Gesamt}} \quad , \quad (3.5)$$

$$S_1 = E_x^2 - E_y^2 = I_{\text{Gesamt}} P \cos(2\gamma) \cos(2\chi) \quad , \quad (3.6)$$

$$S_2 = 2E_x E_y \cos \delta = I_{\text{Gesamt}} P \cos(2\gamma) \sin(2\chi) \quad \text{und} \quad (3.7)$$

$$S_3 = 2E_x E_y \sin \delta = I_{\text{Gesamt}} P \sin(2\gamma) \quad (3.8)$$

mit dem Polarisationsgrad

$$P = \frac{I_{\text{polarisiert}}}{I_{\text{Gesamt}}} \quad , \quad (3.9)$$

wobei I_{Gesamt} die Gesamtintensität der Strahlung und $I_{\text{polarisiert}}$ die Intensität des polarisierten Anteils der Strahlung darstellen. Der normierte Stokesvektor wird durch

$$\vec{S}_N = \frac{1}{S_0} \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{N,0} \\ S_{N,1} \\ S_{N,2} \\ S_{N,3} \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

gebildet. Für $\delta = 0$ und $|S_{N,2}| = 1$ ergibt sich beispielsweise um 45° linear polarisierte Strahlung [3,5,7]. Zur einfachen Beschreibung des Polarisationszustandes einer elektromagnetischen Welle über den normierten Stokesvektor, wird die sogenannte Poincaré-Kugel [6] in Abbildung 3.2 verwendet.

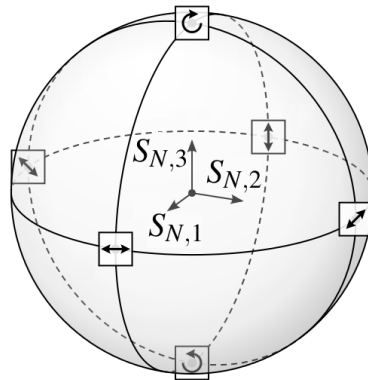


Abbildung 3.2: Poincaré-Kugel zur Beschreibung des Polarisationszustandes elektromagnetischer Wellen [6]

Der Mittelpunkt der Kugel beschreibt vollständig unpolarisiertes, die Oberfläche der Kugel vollständig polarisiertes Licht. Jeder Punkt auf der S_1 - S_2 -Ebene ist teilweise oder vollständig linear polarisiert. Die obere Halbkugel bildet alle rechtsdrehenden elliptischen bzw. zirkularen, die untere Halbkugel alle linkssdrehenden elliptischen bzw. zirkularen Polarisationszustände.

3.2 Funktionsprinzip eines Ellipsometers mit rotierendem Analysator

Ellipsometrie bestimmt die Änderung des Polarisationszustandes von Strahlung einer definierten Wellenlänge durch Reflexion an einer Probeoberfläche. In dieser Arbeit wird die Methode des rotierenden Analysators verwendet, siehe Abbildung 3.3.

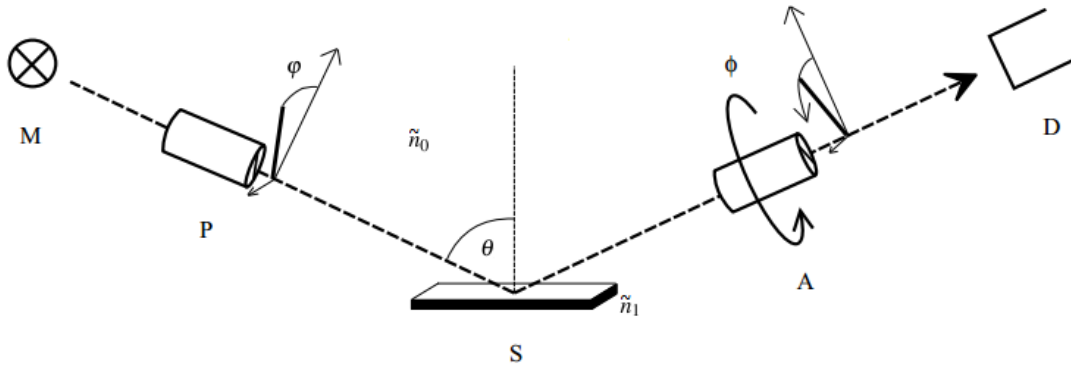


Abbildung 3.3: Prinzip der Ellipsometrie mit rotierendem Analysator: Die Strahlungsquelle M (siehe Kapitel 4.2) emittierte Strahlung einer definierten Wellenlänge; der Polarisator P polarisiert die Strahlung linear um φ relativ zur Einfallsebene der Strahlung zur Probeoberfläche S; die Strahlung propagiert durch ein Medium mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_0 und wird an der Probeoberfläche S mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 reflektiert; der veränderte Polarisationszustand der reflektierten Strahlung wird mit einem Analysator A mit veränderlichem Winkel ϕ und einem Detektor D bestimmt [5]

Diese Methode bietet den Vorteil, dass die Polarisation der Strahlung vor dem Polarisator (P) nicht fest definiert sein muss. Im gewählten Ansatz wird die einfallende Strahlung mit einem Polarisator linear polarisiert und ist vorgegeben. Nach der Reflexion an der Probeoberfläche (S) ist die reflektierte Strahlung im Allgemeinen elliptisch polarisiert. Ein Maß für die Änderung des Polarisationszustandes in Abhängigkeit von Wellenlänge und Einfallswinkel θ der einfallenden Strahlung bei der Reflexion an einer Probeoberfläche stellen die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ dar. Die durch die Reflexion an der Probeoberfläche hervorgerufene Änderung des Polarisationszustandes wird mit einem rotierenden Analysator (A) und einem Detektor (D) bestimmt, siehe Abbildung 3.3 [3, 5, 7, 8]. Durch die kontinuierliche Rotation des Analysators wird die Intensität der reflektierten Strahlung in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ mit dem Detektor gemessen.

Durch Variation der Fourierkoeffizienten α und β wird der Intensitätsverlauf $I(\phi)$ mit

$$I = I_0[1 + \alpha \cos(2\phi) + \beta \sin(2\phi)] \quad (3.11)$$

an die gemessenen Intensitäten approximiert [27]. Die Fourierkoeffizienten α und β beschreiben die Amplitude und Phase des approximierten Intensitätsverlaufs.

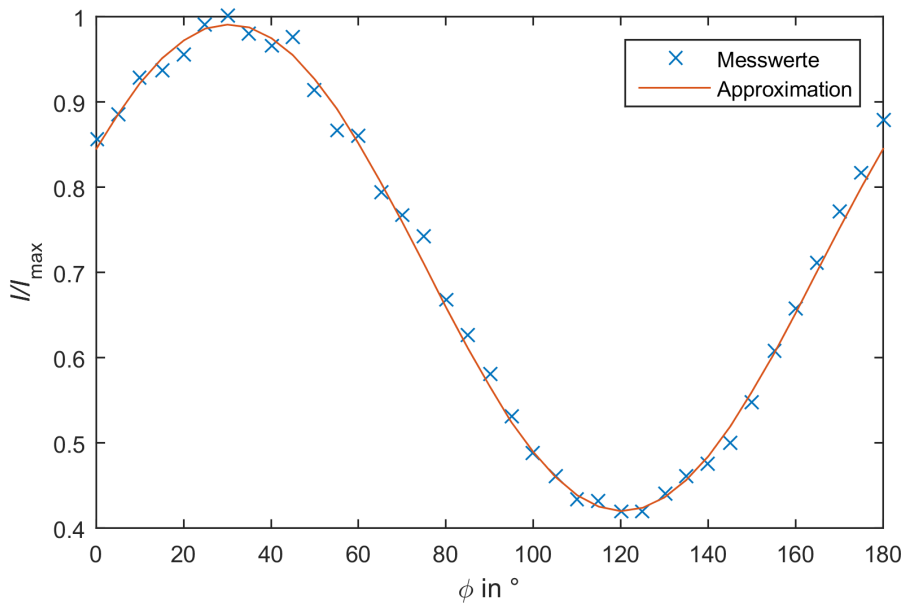


Abbildung 3.4: Beispiel für eine detektierte Intensität der Laserstrahlung in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ und mathematische Approximation einer Cosinusquadratfunktion

Am Beispiel der gemessenen Intensität in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ von Gold ist die Approximation von $I(\phi)$ in Abbildung 3.4 dargestellt.

Sind Polarisator vor der Probenoberfläche und Analysator nach der Probenoberfläche ideal polarisierend, können aus den Fourier-Koeffizienten α und β und dem Polarisatorwinkel φ die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ über die Gleichungen

$$\Psi = \arctan \left(\sqrt{\frac{1+\alpha}{1-\alpha}} \tan(|\varphi|) \right) \quad \text{und} \quad (3.12)$$

$$\Delta = \arccos \left(\frac{\beta}{\sqrt{1-\alpha^2}} \right) \quad (3.13)$$

bestimmt werden [3, 11]. Mit der Kenntnis der Polarisation der Strahlung vor der Reflexion und Δ und Ψ können viele Materialeigenschaften, wie Brechungsindex n und Extinktionskoeffizient k ermittelt werden. Die Bestimmung des komplexen Brechungsindex und der Schichtdicke einer dünnen Schicht auf einem Substrat aus den Ellipsometrieparametern Δ und Ψ wird in den drei nachfolgenden Kapiteln 3.3 bis 3.5 beschrieben.

3.3 Reflexion am Substrat

Das Modell der Reflexion von elektromagnetischer Strahlung am Substrat geht von zwei halbumendlichen, homogenen, isotropen Medien und der Grenzschicht zwischen diesen aus. Das Medium 0 stellt die Umgebung mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_0 und das

Medium 1 stellt die Probenoberfläche mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 dar. Die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ ergeben sich aus der Änderung des Polarisationszustandes der Strahlung nach der Reflexion an der Probenoberfläche.

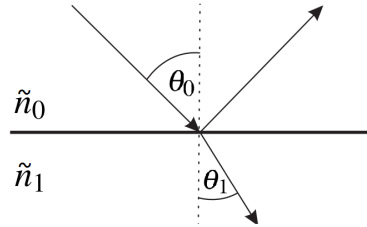


Abbildung 3.5: Reflexion und Transmission einfallender Strahlung an der Grenzfläche zweier Medien

Die Reflexion von elektromagnetischer Strahlung an der Grenzfläche zwischen zwei Medien, siehe Abbildung 3.5, kann durch die komplexen Reflexionskoeffizienten r_p und r_s für die parallele und senkrechte Polarisation relativ zur Einfallsebene charakterisiert werden, die über die Fresnel-Gleichungen

$$r_p = \frac{E_{1,p}}{E_{0,p}} = \frac{\tilde{n}_1 \cos \theta_0 - \tilde{n}_0 \cos \theta_1}{\tilde{n}_1 \cos \theta_0 + \tilde{n}_0 \cos \theta_1} \quad \text{und} \quad (3.14)$$

$$r_s = \frac{E_{1,s}}{E_{0,s}} = \frac{\tilde{n}_0 \cos \theta_0 - \tilde{n}_1 \cos \theta_1}{\tilde{n}_0 \cos \theta_0 + \tilde{n}_1 \cos \theta_1} \quad (3.15)$$

berechnet werden, wobei θ_0 und θ_1 dem Einfalls- und Brechungswinkel nach dem Snellius'schen Brechungsgesetz und $E_{0,p/s}$ und $E_{1,p/s}$ der einfallenden und reflektierten elektromagnetische Feldstärke entsprechen. Die Komponenten des elektrischen Feldstärkevektors der Strahlung, siehe Kapitel 3.1, nach der Reflexion werden durch

$$E_x = E_{1,p} = r_p \cdot E_{0,p} \quad \text{und} \quad (3.16)$$

$$E_y = E_{1,s} = r_s \cdot E_{0,s} \quad (3.17)$$

beschrieben. Die Ellipsometrieparamter Δ und Ψ können aus dem Verhältnis ρ von r_p und r_s mit

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \frac{|r_p| e^{i\delta_p}}{|r_s| e^{i\delta_s}} = \frac{|r_p|}{|r_s|} e^{i(\delta_p - \delta_s)} = \tan \Psi e^{i\Delta} \quad (3.18)$$

berechnet werden. Das Verhältnis ρ wird in die Beträge $|r_{p/s}|$ und die Phasen $\delta_{p/s}$ zerlegt. Ist die einfallende Strahlung vollständig um $\varphi = 45^\circ$ relativ zur Einfallsebene linear polarisiert, dann wird das Verhältnis von $E_{1,p}$ und $E_{1,s}$ der reflektierten Strahlung direkt durch die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ nach

$$\frac{E_{1,p}}{E_{1,s}} = \frac{r_p}{r_s} \cdot \frac{E_{0,p}}{E_{0,s}} = \tan \Psi e^{i\Delta} \quad (3.19)$$

wiedergegeben, da $|E_{0,p}| = |E_{0,s}|$. Mit Hilfe der gemessenen Ellipsometrieparametern Δ und Ψ und bekanntem Einfallswinkel θ_0 kann über die dielektrische Funktion ε

$$\varepsilon = \tilde{n}_0 \sin^2 \theta_0 \left(1 + \left(\frac{1-\rho}{1+\rho} \right)^2 \tan^2 \theta_0 \right) \quad \text{und} \quad (3.20)$$

$$\tilde{n}_1 = \sqrt{\varepsilon} = n_1 + i \cdot k_1 \quad (3.21)$$

der komplexe Brechungsindex \tilde{n}_1 des Probenmaterials ermittelt werden, wobei n_1 die Brechzahl und k_1 den Extinktionskoeffizienten darstellen [3, 5, 8].

3.4 Reflexion an dünnen Schichten

Befindet sich auf dem Substrat eine transparente dünne Schicht der Dicke d , wird die einfallende Strahlung an den Grenzflächen von Umgebung und Schicht sowie Schicht und Substrat mehrfach reflektiert und transmittiert. Die Grenzflächen werden dabei als parallel angenommen, wie in Abbildung 3.6 dargestellt.

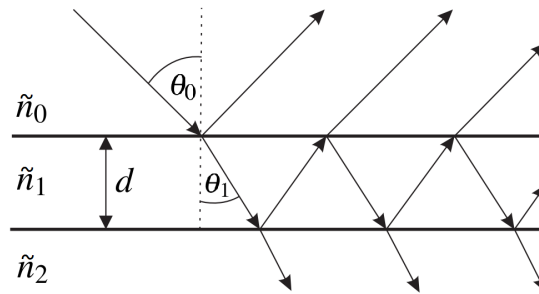


Abbildung 3.6: Reflexion und Transmission einfallender Strahlung im Einschichtmodell; die Superposition aller reflektierten Teilstrahlen ergibt die insgesamt reflektierte Strahlung

Die Superposition aller reflektierten Teilwellen ergibt dann die gesamte reflektierte Welle. Die Reflexionskoeffizienten r_p und r_s an jeder Grenzschicht berechnen sich, wie bei der Reflexion am Substrat, nach den Gleichungen 3.14 und 3.15. Beim Durchqueren der Schicht mit \tilde{n}_1 erhält die Strahlung eine Phasenänderung β , welche durch die Gleichung

$$\beta = 2\pi \tilde{n}_1 \frac{d}{\lambda} \cos(\theta_1) = 2\pi \frac{d}{\lambda} \sqrt{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_0^2 \sin^2 \theta_0} = \beta(d, \lambda, \theta) \quad (3.22)$$

berechnet wird, mit dem Brechungswinkel θ_1 , welcher über das Snellius'sche Brechungsgesetz beschrieben wird, dem Brechungsindex \tilde{n}_1 und der Schichtdicke d der dünnen Schicht sowie der Wellenlänge λ der Strahlung im Vakuum. Zur Beschreibung der resultierenden reflektierten Welle wird β mit einem Phasenterm $e^{-i\beta}$ mit den Fresnelkoeffizienten multipliziert [3, 5, 7, 8, 27] und über die sich ergebende unendliche geometrische

Reihe resultieren die Gleichungen

$$r_p = \frac{r_{01,p} + r_{12,p}e^{-2i\beta}}{1 + r_{01,p}r_{12,p}e^{-2i\beta}} \quad \text{und} \quad (3.23)$$

$$r_s = \frac{r_{01,s} + r_{12,s}e^{-2i\beta}}{1 + r_{01,s}r_{12,s}e^{-2i\beta}} \quad (3.24)$$

mit den Reflexionskoeffizienten r_p und r_s [8]. Das komplexe Verhältnis ρ wird durch die Gleichung

$$\rho = \frac{r_{01,p} + r_{12,p} \cdot e^{-i2\beta}}{1 + r_{01,p} \cdot r_{12,p} \cdot e^{-i2\beta}} \cdot \frac{1 + r_{01,s} \cdot r_{12,s} \cdot e^{-i2\beta}}{r_{01,s} + r_{12,s} \cdot e^{-i2\beta}} \quad (3.25)$$

berechnet. Über Gleichung 3.18 resultieren Δ und Ψ aus ρ , welche wiederum nach Gleichung 3.22 und 3.25 abhängig von der Wellenlänge λ der einfallenden Laserstrahlung im Vakuum, dem Einfallswinkel θ_0 der einfallenden Strahlung, den komplexen Brechungsindizes des Umgebungsmediums \tilde{n}_0 und des Substrats \tilde{n}_2 sowie der Schichtdicke d und des komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 der Schicht sind. Die Wellenlänge λ und der Einfallswinkel θ der einfallenden Laserstrahlung, die komplexen Brechungsindizes von Umgebungsmedium \tilde{n}_0 und Substrat \tilde{n}_2 sind bekannt und die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ werden durch eine Messung bestimmt. Die zu bestimmende Schichtdicke d und der komplexe Brechungsindex \tilde{n}_1 der Schicht sind unbekannt. Die Berechnung der Schichtdicke und des komplexen Brechungsindex der Schicht mit den gemessenen Ellipsometrieparameter Δ und Ψ liefert im Allgemeinen mehrere Lösungen für d und \tilde{n}_1 , da für die Phasenterme der Reflexionskoeffizienten in Gleichung 3.23 und 3.24

$$e^{-i2\beta} = e^{-i(2\beta+2\pi)} \quad (3.26)$$

gilt. Bei konstantem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 ergibt sich über Gleichung 3.22 und 3.26 eine sogenannte Periodendicke d_P mit

$$d(\beta = \pi) = d_P = \frac{\lambda}{2 \cdot \sqrt{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_0^2 \sin^2 \theta_0}}, \quad (3.27)$$

welche von Einfallswinkel θ und Wellenlänge λ der Laserstrahlung abhängig ist. Um d und \tilde{n}_1 eindeutig bestimmen zu können, müssen Δ und Ψ in Abhängigkeit verschiedener Wellenlängen λ oder Einfallswinkel θ der einfallenden Laserstrahlung gemessen werden.

An die erhaltenen Messdaten für Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ oder der Wellenlänge λ der Laserstrahlung wird ein modellierter Dispersionsverlauf der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ des Schichtsystems in Abhängigkeit von Einfallswinkel θ und Wellenlänge λ der Laserstrahlung mathematisch approximiert. Das Modell berechnet sich aus den einzelnen Dispersionsverläufen von Substrat, Schicht und Umgebungsmedium. Die variablen Parameter der Approximation sind dabei der Brechungsindex \tilde{n}_1

und die Dicke d der Schicht. Die Werte für \tilde{n}_1 und d , für die die modellierte Dispersion von Δ und Ψ am besten mit den Messdaten von Δ und Ψ übereinstimmt, sind die gesuchten Werte für den Brechungsindex \tilde{n}_1 und die Dicke d der Schicht [3, 5, 7, 8], siehe Abbildung 3.7.

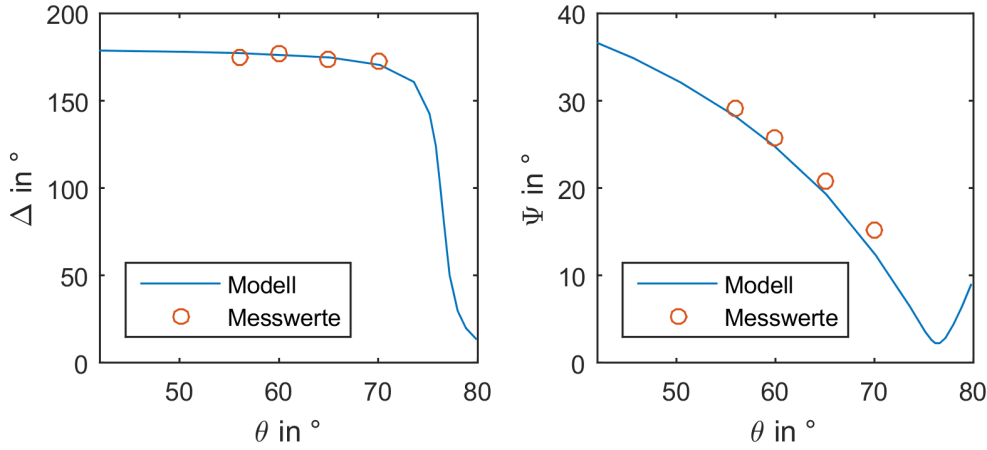


Abbildung 3.7: Beispiel für Modell und Messdaten für Δ (rechts) und Ψ (links) in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ der Laserstrahlung

Modelle bestehend aus einem Substrat und mehreren dünnen Schichten können auch modelliert werden [3], in dieser Arbeit wird darauf aber nicht weiter eingegangen, da ausschließlich Substrate oder Einschichtmodelle betrachtet und vermessen werden. In Kapitel 3.5 wird die Modellierung der Dispersionen von Substrat- und Einschichtsystemen betrachtet, eine genaue Erläuterung der Modellberechnungen soll jedoch kein Bestandteil dieser Arbeit sein.

3.5 Dispersionsmodell der Ellipsometrieparameter

Ein Modell ist definiert durch ein vorher festgelegtes System von Materialschichten. Je nach Anzahl der Schichten wird die Strahlpropagation durch ein Substrat- (keine Schicht), Einschicht- oder Mehrschichtmodell beschrieben. Jede Schicht wird durch eine eigene dielektrische Funktion und somit Dispersion beschrieben. Die einzelnen Dispersionsverläufe der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ können allgemein in Dielektrika, Halbleiter und Metalle gegliedert werden. Bei einem Substrat fällt Δ zwischen $0^\circ < \theta < 90^\circ$ immer von 180° auf 0° . Bei einem Dielektrikum erscheint dieser Verlauf als Phasensprung beim Brewsterwinkel, da Δ die Phasendifferenz von r_p und r_s darstellt und $\text{Re}(r_p)$ beim Brewsterwinkel das Vorzeichen wechselt, siehe Gleichung 3.18. Da r_p beim Dielektrikum rein reell ist, beträgt der Phasensprung 180° . Bei Halbleitern und Metallen ist dieser Abfall von Δ von 180° auf 0° kontinuierlich, da r_p und r_s komplexe Anteile haben. Ψ erreicht beim Brewsterwinkel ein Minimum, da der Reflexionsgrad der parallelen Komponente der elektrischen Feldstärke beim Brewsterwinkel minimal wird.

Bei Dielektrika erreicht das Minimum den Wert $\Psi = 0^\circ$. Mit zunehmenden Extinktionsfaktor k des Materials nimmt das Minimum von Ψ Werte von $\Psi > 0^\circ$ an, siehe Abbildung 3.8.

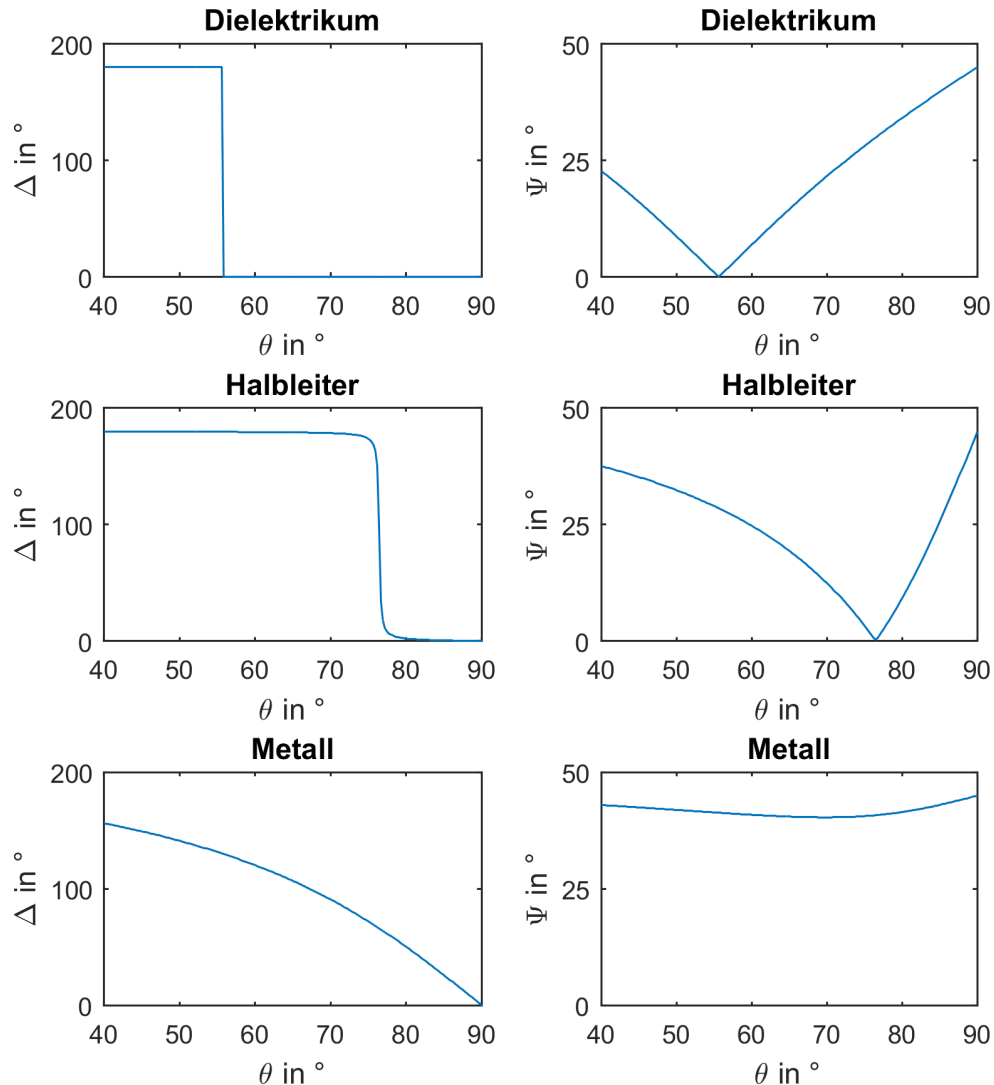


Abbildung 3.8: Schematische Verläufe der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ der Laserstrahlung der Wellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ für Dielektrika, Halbleiter und Metalle

Die Verläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit der Wellenlänge λ und des Einfallswinkels θ berechnen sich entweder über gemessene Dispersionskurven oder Berechnungsmodelle wie z. B. Sellmeier, Lorentz, Cauchy, Drude und den Fresnel-Gleichungen. Das fertige Schichtmodell des Probenmaterials setzt sich aus den einzelnen Modellen der jeweiligen Materialien für ein Substrat, einer beliebigen Anzahl an Schichten und dem Umgebungsmedium zusammen. Die resultierenden Dispersionskurven und die daraus folgenden Verläufe von Δ und Ψ berechnen sich hier nach dem Berreman Algorithmus.

mus [3], auf welchen in dieser Arbeit jedoch nicht weiter eingegangen wird.

Ob eine Materialschicht als dünne Schicht oder als Substrat betrachtet werden muss, hängt von der optischen Eindringtiefe z_e der verwendeten Strahlung mit

$$z_e = \frac{\lambda}{4\pi k} \quad , \quad (3.28)$$

ab [3]. Ist die Schichtdicke d einer Schicht auf einem Substrat größer als die optische Eindringtiefe z_e , wechselwirkt keine Strahlung mit dem Substrat und die Schicht wird selbst als Substrat betrachtet. In Abbildung 3.9 ist der Dispersionsverlauf für Δ und Ψ anhand einer schematischen Metallschicht mit der optischen Eindringtiefe $z_e = 10$ nm auf einem Dielektrikum bei verschiedenen Schichtdicken dargestellt.

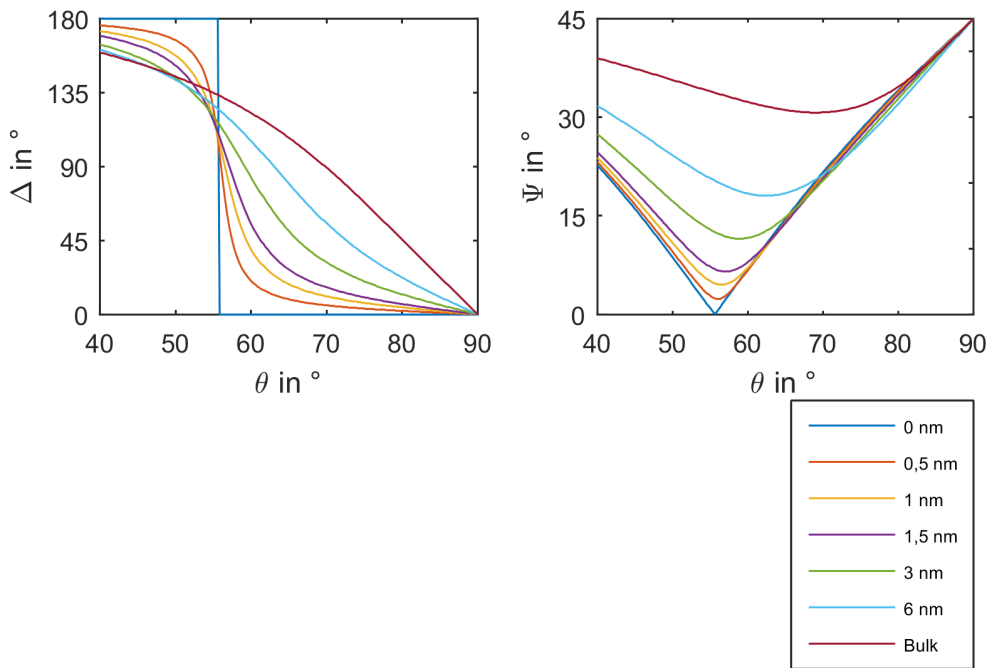


Abbildung 3.9: Die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ in Abhängigkeit von Einfallswinkel θ der Laserstrahlung bei der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm von einer Metallschicht auf einem dielektrischen Substrat bei verschiedenen Schichtdicken d

Bei einer Metallschichtdicke von $d = 0$ nm ist der für ein Dielektrikum typische Phasensprung bei Δ und das Minimum von $\Psi = 0^\circ$ zu erkennen. Mit zunehmender Schichtdicke d konvergiert das Schichtmodell eines Metalls zum Substratmodell eines Metalls, da $d > z_e$ wird.

Anhand eines schematischen Beispiels einer Isolatorschicht auf einem Metallsubstrat lässt sich die in Kapitel 3.4 erläuterte Periodendicke anschaulich darstellen. Der dazugehörige Verlauf für Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ der Strahlung ist in Abbildung 3.10 dargestellt, wobei der komplexe Brechungsindex \tilde{n} der Schicht und die

Wellenlänge λ der einfallenden Laserstrahlung fest definiert sind.

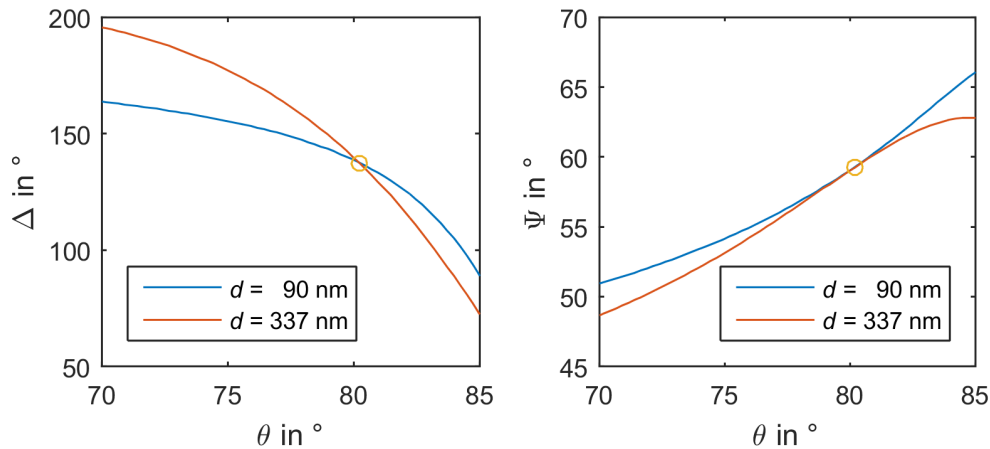


Abbildung 3.10: Schematische Darstellung der Periodendicke d_P ; für einen Messwert der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ lösen mehrere Werte d die Gleichung 3.22

Die Periodendicke der Schicht beträgt in diesem Beispiel $d_P = 247$ nm bei $\theta = 80^\circ$. In Abbildung 3.10 ist zu erkennen, dass die Dispersionsverläufe für die Schichtdicken $d = 90$ nm und $d = 337$ nm, deren Differenz der Periodendicke d_P entspricht, die gleichen Lösungen für Δ und Ψ bei $\theta = 80^\circ$ annehmen. Um das die Schicht beschreibende Modell ermitteln zu können, müssen Δ und Ψ für mehrere verschiedene Einfallswinkel θ oder Wellenlängen λ gemessen werden, damit Gleichung 3.22, 3.23 und 3.24 eindeutig lösbar ist, siehe Kapitel 3.4. Eine andere Möglichkeit zur eindeutigen Lösung wäre den zulässigen Bereich der Schichtdicke d einzuschränken, wenn der Betrag der Schichtdicke d geschätzt werden kann. Dadurch ließe sich eine Schichtdickenmessung bei bekanntem komplexen Brechungsindex \tilde{n} der Schicht mit i verschiedenen Einfallswinkeln θ bzw. Wellenlängen λ auf das $\frac{1}{i}$ -fache der Zeit beschleunigen, da nur noch eine Messung ausreichend wäre.

3.6 Elektronenzustandsdichte in Metallen

Einige Ergebnisse in dieser Arbeit, z. B. der Pump-Probe-Reflektometrie, erfordern zur Erklärung eine gutes Verständnis über die Energiezustände der Elektronen im Metall. Im Folgenden wird kurz auf die Besetzungswahrscheinlichkeit und Zustandsdichterverteilung von Elektronen und die Auswirkung der Temperatur auf diese eingegangen. Die Betrachtung erfolgt zunächst in einem freien dreidimensionalen Elektronengas, in dem die enthaltenen N Elektronen auch N Energieniveaus der Energie E zugeordnet sind, da gemäß dem Pauli'schen Ausschlussprinzip für Fermionen keine zwei Elektronen in allen Quantenzahlen übereinstimmen können. Die Energie des höchsten besetzten Niveaus im Grundzustand dieses Systems bei $T = 0$ K wird als Fermienergie E_F bezeichnet.

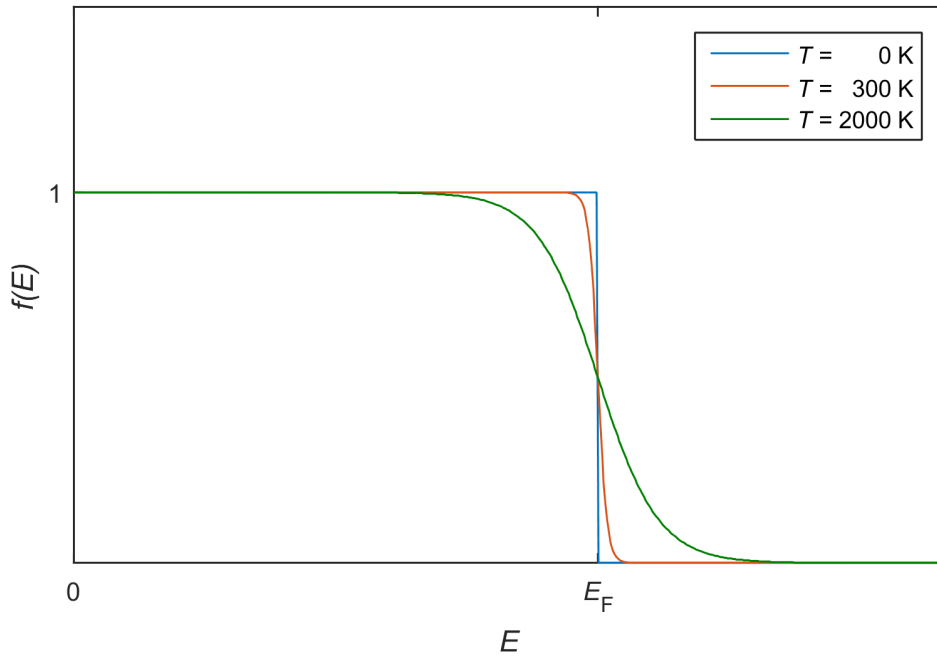


Abbildung 3.11: Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion bei den Temperaturen $T = 0 \text{ K}$, $T = 300 \text{ K}$ und $T = 2000 \text{ K}$ für ein freies dreidimensionales Elektronengas konstanter Teilchenzahl N [22]

Die Besetzungswahrscheinlichkeit der Energieniveaus wird durch die Fermi-Dirac-Verteilung, dargestellt in Abbildung 3.11, durch

$$f(E) = \frac{1}{\exp[(E - \mu)/(k_B T)] + 1} \quad (3.29)$$

beschrieben, wobei T der Temperatur, k_B der Boltzmannkonstante und μ dem chemischen Potential entsprechen. Das chemische Potential μ ist eine Funktion der Temperatur T und entspricht bei $T = 0 \text{ K}$ der Fermienergie $\mu = E_F$. Im Grundzustand bei $T = 0 \text{ K}$ ist die Besetzungswahrscheinlichkeit aller Energieniveaus mit $E \leq E_F$ gleich eins. Mit zunehmender Temperatur T verbreitert sich die Fermikante bei E_F , da Elektronen der Energie $E \leq E_F$ in Zustände höherer Energie angeregt werden.

Die Fermi-Dirac-Verteilung gibt aber keine Aussage über die Anzahl der möglichen Energiezustände pro Energieintervall, der sogenannten Zustandsdichte $D(E)$, an. Die Zustandsdichte $D(E)$ wird über

$$D(E) = \frac{V}{2\pi^2} \cdot \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}} \cdot E^{\frac{1}{2}} \quad (3.30)$$

beschrieben, wobei V dem Volumen, m der Elektronenmasse, und \hbar dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum entspricht. Der Verlauf der Dichte der besetzten Niveaus ergibt sich über $f(E, T) \cdot D(E)$.

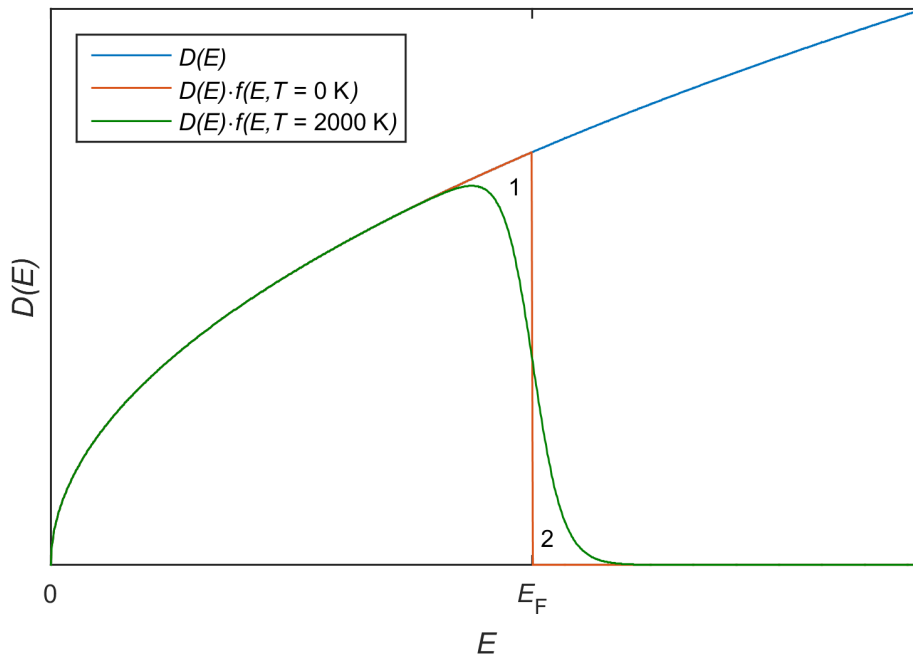


Abbildung 3.12: Zustandsdichte der besetzten Niveaus als Funktion der Energie für ein freies dreidimensionales Elektronengas konstanter Teilchenzahl N bei der Temperatur $T = 0 \text{ K}$ und $T = 2000 \text{ K}$ [22]

Bei $T = 0 \text{ K}$ sind keine Niveaus der Energie $E > E_F$ besetzt, siehe Abbildung 3.12. Bei endlichen Temperaturen $T > 0 \text{ K}$ verbreitert sich, wie in Abbildung 3.11, die Fermikante und auch Niveaus der Energie $E > E_F$ können besetzt werden. Im Gegenzug bleiben unbesetzte Zustände für $E < E_F$ zurück. Die Elektronen werden aus Gebiet 1 thermisch in das Gebiet 2 angeregt [22].

Das Modell des freien dreidimensionalen Elektronengases muss für die Beschreibung von Festkörpern angepasst werden. Die Elektronen in einem Festkörper können nicht jedes Energieniveau besetzen, sondern sind in Energiebändern angeordnet. Diese Energiebänder sind durch Bandlücken getrennt, innerhalb derer keine Elektronenniveaus existieren. Diese verbotenen Bereiche entstehen durch die Wechselwirkung der Leitungselektronen mit den Ionenrümpfen des Festkörpers. Sind die erlaubten Energiebänder im Grundzustand bei $T = 0 \text{ K}$ vollständig besetzt oder unbesetzt, ist der Festkörper ein Isolator oder Halbleiter. Sind eines oder mehrere der erlaubten Energiebänder bei $T = 0 \text{ K}$ teilweise besetzt, ist der Festkörper ein Metall. Zur Beschreibung der Zustandsdichteverteilung der Elektronen im Metall wird das Modell des freien Elektronengases zum Modell des nahezu freien Elektronengases erweitert. Eine genauere Betrachtungsweise zur Ursache der Energiebänder und Energiebandlücke ist in [22] beschrieben. Die Elektronen können durch Zufuhr von Energie von einem Energieband in ein anderes übergehen. Dabei müssen Impuls- und Energieerhaltungssatz erfüllt sein. Die Anregungsenergie E_{zu} muss dabei mindestens der Energiedifferenz der Interbandübergangsschwelle (Interband Transition Threshold) mit $E_{\text{zu}} \geq E_{\text{ITT}}$ entsprechen.

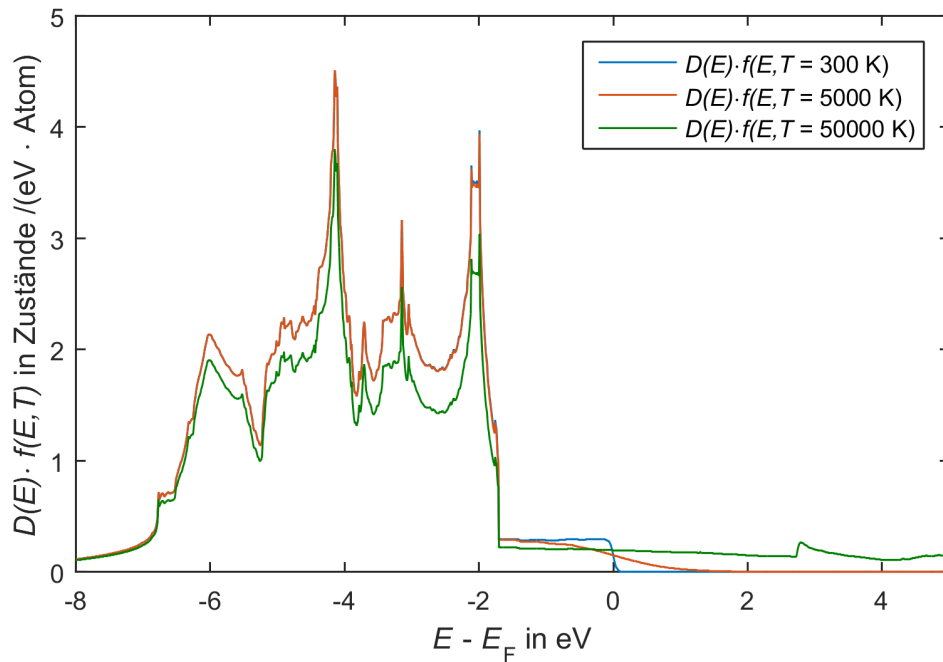


Abbildung 3.13: Zustandsdichteverteilung für Gold in Abhängigkeit der Energie bei $T = 300$ K, $T = 5000$ K und $T = 50000$ K [18, 22]; eine Temperatur von $T = 50000$ K beeinflusst die Zustandsdichteverteilung aller Energieniveaus, auch weit oberhalb der Fermikante entstehen freie Zustände

In dieser Arbeit werden hauptsächlich die optischen Eigenschaften von Gold betrachtet. Die Zustandsdichteverteilung für $T = 300$ K, $T = 5000$ K und $T = 50000$ K am Beispiel von Gold ist in Abbildung 3.13 dargestellt. Die Energie der Interbandübergangsschwelle bei Raumtemperatur beträgt $E_{IT} = 2,47$ eV für einen Übergang eines Elektrons vom d - in das s -Band [15, 22].

3.7 Zwei-Temperatur-Modell

Bei Wechselwirkung von Strahlung mit Materie treten Reflexion, Absorption und Transmission auf. Diese Effekte lassen sich mittels der Fresnel-Gleichungen beschreiben [15, 21, 26]. In Metallen beschreibt der auftretende Extinktionskoeffizient k des komplexen Brechungsindex \tilde{n} die Absorption der Strahlung. Das Beersche Gesetz

$$I(d) = I_0 \cdot e^{-\alpha z} \quad (3.31)$$

beschreibt die Abschwächung der Strahlungsintensität I in Abhängigkeit der durchstrahlten Materialdicke z über den Absorptionskoeffizienten α , wobei k und α über

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda} = \frac{1}{z_e} \quad (3.32)$$

miteinander korrelieren [3]. Die in ein Metall deponierte Energie wird von den nahezu freien Elektronen des Leitungsbandes des Metalls aufgenommen und diffundiert über Elektron-Elektron und Elektron-Phonon Stöße in den Festkörper. Wird das Material mit Laserstrahlung mit Pulsdauern $\tau_{H,Puls}$ im Subpikosekundenbereich bestrahlt, müssen Elektronensystem und Phononensystem getrennt betrachtet werden.

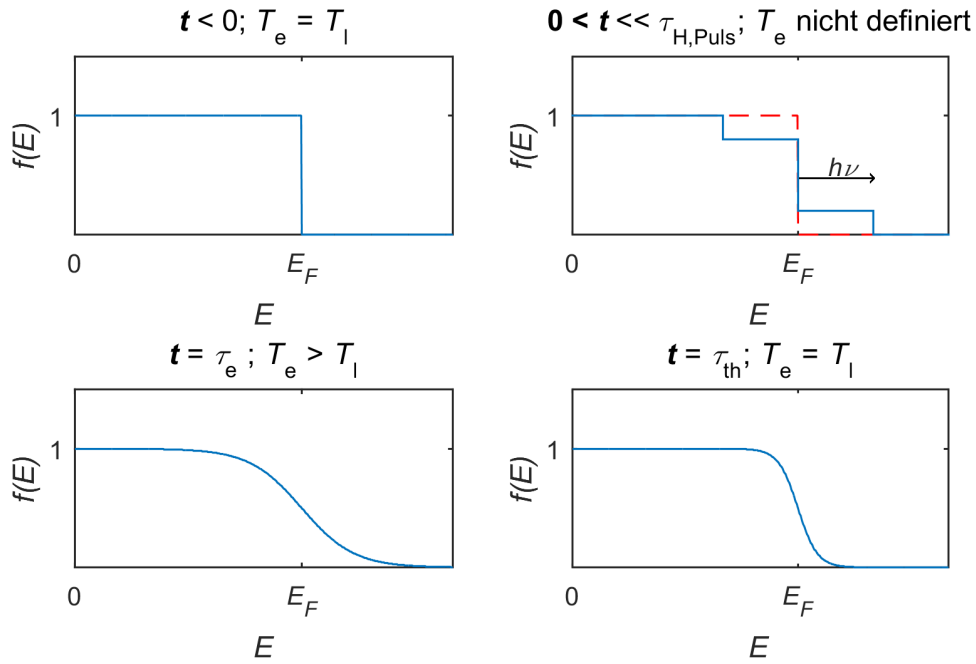


Abbildung 3.14: *O.l.* : Die Fermiverteilung eines idealen Metalls vor der Anregung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung; *o.r.* : Fermiverteilung während der Anregung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung, Elektronen werden aus dem Niveau unterhalb der Fermienergie in ein Niveau oberhalb der Fermienergie angeregt; *u.l.* : die Elektronen thermalisieren nach $t \geq \tau_e$ und eine Fermiverteilung $T_e > T_l$ entsteht; *u.r.* : Elektronensystem und Phononensystem sind nach $t \geq \tau_{th}$ im Gleichgewicht mit $T_e = T_l$ [15,22]

Der Zeitpunkt $t = 0$ wird als Beginn der Wechselwirkung der Laserstrahlung mit der Materie definiert. Die Fermiverteilung in Abbildung 3.14 zur Zeit $t < 0$ zeigt die Besetzungswahrscheinlichkeitsverteilung im Elektron-Phonon Gleichgewicht vor Bestrahlung des Materials mit ultrakurz gepulster Strahlung, wobei Elektronentemperatur T_e und Phononentemperatur T_l gleich sind. Die Anregung des Materials durch Laserstrahlung bei $t = 0$ führt zu einer Nichtgleichgewichtsverteilung der Elektronen, wodurch keine Temperatur der Elektronen T_e definiert ist. Durch Elektron-Elektron-Stöße zwischen angeregten Elektronen und Elektronen nahe der Fermienergie thermalisieren die Elektronen innerhalb der Relaxationszeit $t = \tau_e$ und ein Gleichgewicht innerhalb des nahezu freien Elektronengases mit $T_e > T_l$ stellt sich ein. Über Elektronen-Elektronen-Stöße diffundiert die Energie innerhalb des Elektronensystems in den Festkörper hinein, wobei gleichzeitig Energie vom Elektronensystem an das Phononensystem abgegeben wird und T_e abnimmt. Mit dem Zwei-Temperatur-Modell kann die Wärmeleitung des Elektro-

nensystems über

$$C_{ev}(T_e) \cdot \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot (\lambda_{th}(T_e, T_l) \cdot \nabla T_e) - G(T_e) \cdot (T_e - T_l) + q_V(\vec{r}, t) \quad (3.33)$$

und die Wärmeleitung des Phononensystems mit

$$C_{lv}(T_l) \cdot \frac{\partial T_l}{\partial t} = G(T_e) \cdot (T_e - T_l) \quad , \quad (3.34)$$

beschrieben werden, wobei C der Wärmekapazität, G dem Kopplungsfaktor und q der Wärmequelle entspricht [26]. Nach einer materialspezifischen Relaxationszeit τ_{th} von wenigen Pikosekunden erreichen Elektronen und Phononen die gleiche Temperatur $T_e = T_l$. Die Bestrahlung von Materie mit Laserstrahlung mit Pulsdauern im Bereich von Nanosekunden und größer benötigt keine getrennte Betrachtung von Elektronen- T_e und Phononentemperatur T_l .

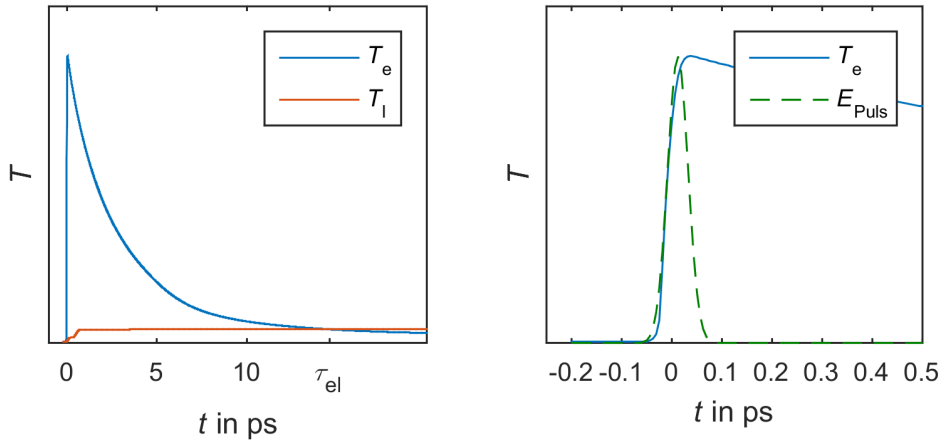


Abbildung 3.15: *Links*: schematische Darstellung der Elektronentemperatur T_e und der Phononentemperatur T_l nach Anregung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung der Pulsdauer $\tau_{H,Puls} = 35$ fs, die Bereiche konstanter Phononentemperatur entstehen aufgrund der zur Phasenumwandlung nötigen Aufnahme von Wärme; *rechts*: schematische Darstellung der Elektronentemperatur mit besserer zeitlicher Auflösung, die Elektronentemperatur folgt dem zeitlichen Verlauf der steigenden Flanke der Pulsenergie [15, 18, 23]

In Abbildung 3.15 sind Elektronen- und Phononentemperatur nach der Anregung durch ultrakurz gepulster Laserstrahlung schematisch dargestellt. Die Elektronentemperatur folgt bei Bestrahlung mit ultrakurz gepulster Strahlung dem zeitlichen Verlauf der Laserstrahlung und steigt deutlich stärker an als die Phononentemperatur [15–19, 21, 23, 26].

4 Material und Methoden

4.1 Pump-Probe-Ellipsometrie Aufbau

Die Pump-Probe-Ellipsometrie ermöglicht eine zeitlich und räumlich aufgelöste Darstellung von ultraschnellen physikalischen Prozessen, wie Änderung der relativen Reflektivität oder des komplexen Brechungsindex, während der Materialbearbeitung mit ultrakurz gepulster Strahlung im Femto- bis Nanosekundenbereich. Dafür werden zwei ultrakurze Laserpulse benötigt, ein Puls mit großer Leistung, welche eine Materialveränderung durch Erwärmung (engl. pump) hervorrufen kann. Dieser wird als Pump-Puls oder Pumplaserstrahlung bezeichnet. Der zweite Puls mit geringer Leistung wird verwendet um die durch die Pumplaserstrahlung hervorgerufene Veränderung der physikalischen Größen im Material zu detektieren (engl. probe). Analog wird dieser als Probe-Puls bzw. Probelerstrahlung bezeichnet. Die Pumplaserstrahlung wird senkrecht auf die Probenoberfläche fokussiert und ruft dabei z. B. Reflektivitätsänderungen, Schmelzen oder Abtragen hervor. Die Probelerstrahlung strahlt unter einem definierten Einfallswinkel θ auf die Probenoberfläche ein, wird reflektiert, siehe Kapitel 3.3 und 3.4, und der Polarisationszustand der Probelerstrahlung wird, wie in Kapitel 3.2 beschrieben, mit der Methode mit rotierendem Analysator detektiert. Mit diesem Aufbau kann orts aufgelöst die durch die Pumplaserstrahlung hervorgerufene mögliche Änderung des komplexen Brechungsindex auf der Probenoberfläche bestimmt werden. Damit die Dynamik eines laserstrahlungsinduzierten Prozesses erfasst werden kann, muss erstens die Pulsdauer der Probelerstrahlung kleiner als die Dauer des Prozesses sein und zweitens die Pump- und Probelerstrahlung zeitlich relativ zueinander verzögert werden. Das heißt die zurückgelegten optischen Weglängen von Pump- und Probelerstrahlung müssen relativ zueinander variiert werden. Der hierfür verwendete Pump-Probe-Aufbau wird im folgenden beschrieben. Der Laser (1) emittiert horizontal linear polarisierte gepulste Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$, der Beugungsmaßzahl $M^2 < 1,2$, einer Pulsenergie von rund 7 mJ, einer Pulsdauer von $\tau_H = 34 \text{ fs}$ und einer Repetitionsrate von 1 kHz, wobei alle Messungen in dieser Arbeit mit Einzelpulsen durchgeführt werden. Mittels Strahlteiler (2) wird die Laserstrahlung in Pump- (rot, 7) und Probelerstrahlung (grün, 6) im Verhältnis 2:5 aufgeteilt. Die Probelerstrahlung wird in einen optisch parametrischen Verstärker (OPA, 5) geleitet und dessen Wellenlänge zu 515 nm konvertiert, damit die Pump- und Probelerstrahlungen bei der Detektion optisch besser voneinander separiert werden können. Der OPA kann die Wellenlänge der Probelerstrahlung von 240 nm bis 20 μm variieren. Die Probelerstrahlung wird im Ellipsometer (11) auf die Probenoberfläche projiziert, reflektiert und auf einem Kamerachip abgebildet. Der genaue Strahlengang der Probelerstrahlung im Ellipsometer wird in Kapitel 4.2 beschrieben. Die Pumplaserstrahlung passiert nach dem Strahlteiler eine Verzögerungsstrecke (4) mit einer Länge von 30 cm und einer minimalen Schrittweite von 1 μm . Der Puls der Pumplaserstrahlung legt diese Strecke

über vier Faltungsspiegel vier mal zurück und kann somit um bis zu 4 ns relativ zum Puls der Probeleraserstrahlung mit einer minimalen Schrittweite von 13,3 fs zeitlich verzögert werden. Nach der Verzögerungsstrecke wird die Pumplaserstrahlung über eine in der Höhe variierbare z -Achse (9) und einer extradünnen Fokussierlinse für ultrakurz gepulste Laserstrahlung (12) der Brennweite $f_{\text{Pump}} = 150$ mm auf die Probenoberfläche fokussiert. Der konstruierte Pump-Probe-Aufbau ist in Abbildung 4.1 dargestellt.

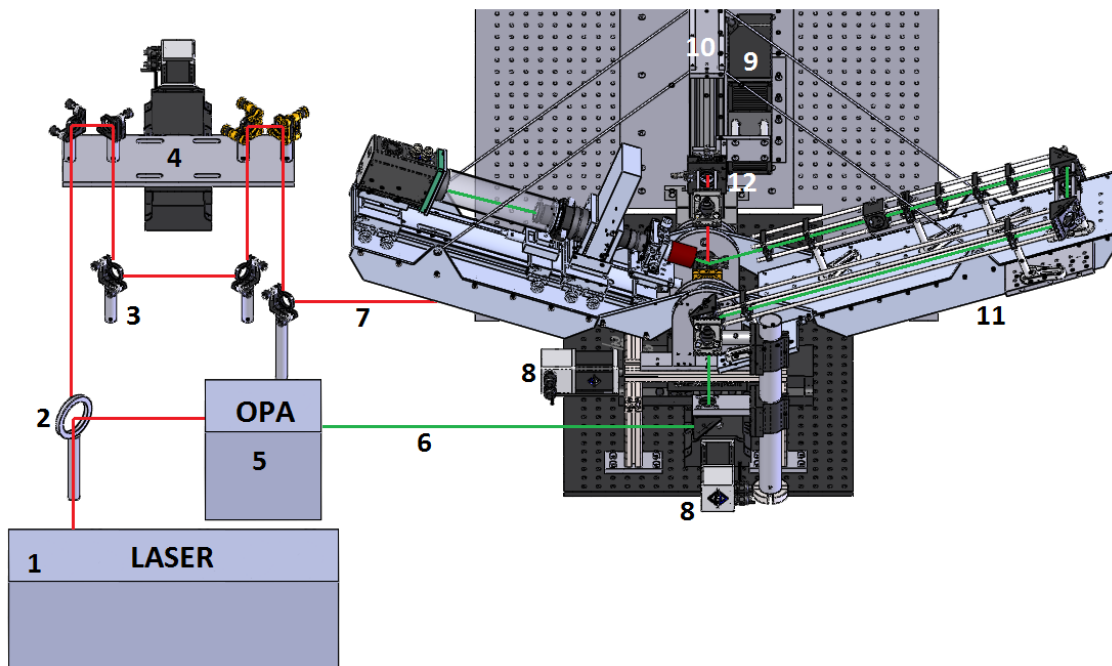


Abbildung 4.1: Versuchsaufbau: (1) Laser emittiert Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda = 800$ nm; (2) Strahlteiler; (3) Spiegel; (4) Verzögerungsstrecke; (5) optisch parametrischer Verstärker; (6) Probeleraserstrahlung (grün) mit $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm; (7) Pumplaserstrahlung (rot) mit $\lambda_{\text{Pump}} = 800$ nm; (8) x - y -Positionieranlage für die Probe; (9) z -Achse zur Fokuspositionierung; (10) Spindel um Einfallswinkel θ der Strahlung auf die Probenoberfläche zu variieren; (11) Ellipsometer (siehe Kapitel 4.2); (12) extra dünne Linse für ultrakurz gepulste Laserstrahlung mit der Brennweite $f_{\text{Pump}} = 150$ mm fokussiert die Pumplaserstrahlung auf die Probenoberfläche

Die Laufwege von Pump- und Probeleraserstrahlung können auf die exakt gleiche Distanz eingestellt werden, sodass beide Pulse zeitgleich auf der Probenoberfläche auftreffen, siehe Kapitel 4.3. Somit kann mittels Probeleraserstrahlung der durch die Pumplaserstrahlung induzierte Prozess auf der Probenoberfläche mit einer sehr großen zeitlichen Auflösung detektiert werden, indem schrittweise die Verzögerungsstrecke variiert wird und somit der relative zeitliche Abstand der Pulse von Pump- und Probeleraserstrahlung zueinander variiert wird. Zusätzlich wird über eine Spindel (10) der Einfallswinkel θ der Probeleraserstrahlung auf die Probenoberfläche von 55° bis 90° eingestellt. Winkel unter 55° sind aufgrund der Abmessungen der Dreheinheit des Analysators und der Größe des verwendeten Mikroskopobjektivs nicht möglich.

4.2 Charakterisierung der Pump- und Probelerstrahlung

4.2.1 Räumliche Charakterisierung der Laserstrahlung

Die vom Laser emittierte Laserstrahlung hat nach dem Strahlteiler die Strahlabmessungen von $d_{\sigma,x} = 11$ mm und $d_{\sigma,y} = 10,6$ mm. Die Strahlabmessungen werden mittels dem 2. Moment der Intensitätsverteilung bestimmt [25]. Die Pulsenergie der Pump-laserstrahlung kann durch einen automatisierten externen Abschwächer (Enhanced Watt Pilot, Fa. Altechna) stufenlos von etwa $0,3$ μJ bis 780 μJ variiert werden. Mit einem Prisma aus Quarzglas kann dieser Energiebereich um weitere 96 % reduziert werden, sodass die Pulsenergie der Pump-laserstrahlung auf der Probenoberfläche von etwa $0,012$ μJ bis 65 μJ eingestellt werden kann. Nach dem Abschwächer werden die Strahlabmessungen der Pump-laserstrahlung mit einem reflektiven Teleskopsystem ($f_1 = -1000$ mm, $f_2 = 500$ mm) im Verhältnis 2:1 auf $d_{\sigma,x} = 5,5$ mm und $d_{\sigma,y} = 5,3$ mm reduziert, da die weitere Strahlführung mit $1''$ Spiegeln erfolgt. Die räumliche Intensitätsverteilung der Pump-laserstrahlung nach dem Teleskopsystem ist in Abbildung 4.2 links dargestellt.

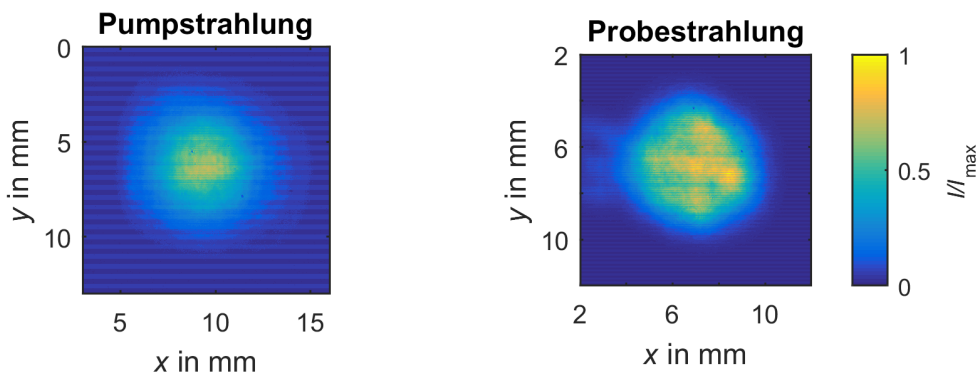


Abbildung 4.2: *Links*: räumliche Intensitätsverteilung der Pump-laserstrahlung nach dem Teleskopaufbau mit $\lambda_{\text{Pump}} = 800$ nm; *rechts*: räumliche Intensitätsverteilung der Probelerstrahlung mit $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm, die Intensitätsverteilungen sind auf das Intensitätsmaximum normiert

Die Strahlabmessungen nach der Fokussierung mittels Fokussierlinse (12) der Pump-laserstrahlung auf die Probenoberfläche werden mit der Methode des quadrierten Durchmessers aufgetragen gegenüber dem natürlichen Logarithmus der Fluenz bestimmt [24]. Der Strahldurchmesser im Fokus der Pump-laserstrahlung wird in Kapitel 4.4 ermittelt und beträgt $d_{\sigma} = 29,1$ μm , siehe Abbildung 4.15. Die räumliche Intensitätsverteilung der vom OPA erzeugten Probelerstrahlung ist in Abbildung 4.2 rechts für eine eingestellte Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm dargestellt. Die Strahlabmessungen der Probelerstrahlung betragen $d_{\sigma,x} = 5,5$ mm und $d_{\sigma,y} = 4,8$ mm.

Als Vergleich zur Ellipsometrie mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung wird der komplexe Brechungsindex zusätzlich mit einem Dauerstrichlasers bei Raumtemperatur ohne Pumplaserstrahlung ermittelt. Dabei wird die Laserstrahlung einer Laserdiode mit der Wellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ als Probelerstrahlung verwendet. Der Strahlquerschnitt ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Die Strahlabmessungen betragen $d_{\sigma,x} = 4,5 \text{ mm}$ und $d_{\sigma,y} = 4,8 \text{ mm}$.

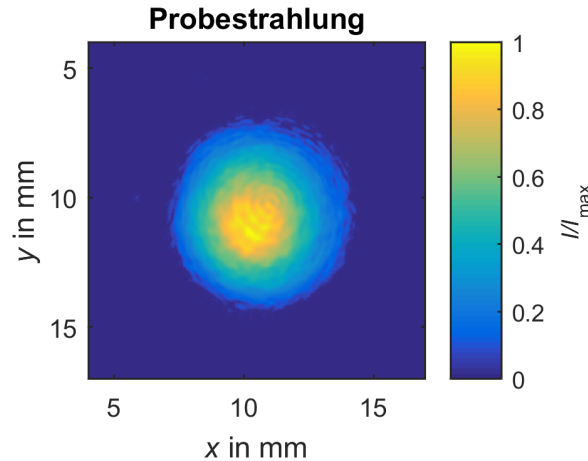


Abbildung 4.3: Normierte räumliche Intensitätsverteilung der Probelerstrahlung der Laserdiode mit $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$

4.2.2 Strahlengang im Ellipsometer

Die Probelerstrahlung wird über Silberspiegel (S1 bis S3) und dünne Linsen für ultrakurz gepulste Laserstrahlung (L1 bis L3) durch das Ellipsometer geführt, kollimiert und verkleinert auf der Probenoberfläche abgebildet, siehe Abbildung 4.4. Mit einer $\frac{\lambda}{2}$ -Platte (2) und einem Polarisator (3) kann die Leistung der Probelerstrahlung manuell eingestellt werden. Mit dem Polarisator (3) wird die Probelerstrahlung linear um 45° relativ zur Einfallsebene polarisiert. Damit sind die parallel und senkrecht polarisierte Komponente der räumlichen elektrischen Feldstärkeverteilung relativ zur Probenoberfläche gleich groß und das Verhältnis von $E_{1,p}$ und $E_{1,s}$ der reflektierten Strahlung wird direkt durch die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ beschrieben, siehe Gleichung 3.19. Nach dem Objektiv (4) wird mit einem Bandpassfilter, dem rotierenden Analysator (5) und der Tubuslinse (6) die an der Probenoberfläche reflektierte Probelerstrahlung orts aufgelöst mittels einer Detektorkamera (7) in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ bestimmt. Der Bandpassfilter ist ein Laser-Line Filter mit einer Bandbreite von 4 nm zentriert bei 515 nm und dient dazu Hintergrundstrahlung, gestreute Pumplaserstrahlung mit $\lambda_{\text{Pump}} \neq \lambda_{\text{Probe}}$ und Plasmaleuchten zu unterdrücken, damit nur die Probelerstrahlung detektiert wird und zur Bildentstehung beiträgt. Weiterhin basieren die Berechnungen der Ellipsometrieparameter, Brechungsindex n , Extinktionskoeffizient k und der Schichtdicke d auf monochromatischer Laserstrahlung. Der Strahlengang wird

nach dem Objektiv komplett in Rohren geführt um ein möglichst hohes Signal-Rausch-Verhältnis der detektierten Probelerstrahlung zu erhalten. Das Objektiv (4) mit einer Brennweite von 10 mm ist unendlich korrigiert und kollimiert die Strahlung, damit diese annähernd parallel durch den Analysator (5) propagiert und somit Abbildungsfehler unterdrückt werden und das Kontrastverhältnis nicht verschlechtert wird. Der Analysator besteht aus zwei Glan-Taylor-Prismen, wodurch ein Strahlversatz verhindert wird. Die Tubuslinse bildet die polarisierte Strahlung nach dem Analysator auf dem Kamerachip (7) ab.

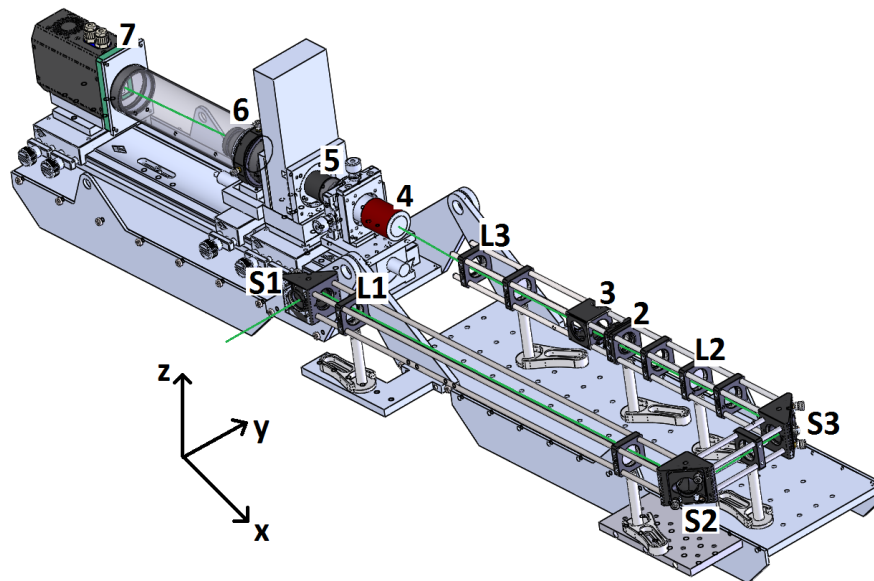


Abbildung 4.4: Strahlengang der Probelerstrahlung: (1) dünne Linsen für ultrakurze gepulste Laserstrahlung dienen zur Strahlformung und bilden die Probelerstrahlung mit $d_y = 200 \mu\text{m}$ auf der Probenoberfläche ab; (2) $\frac{\lambda}{2}$ -Platte dreht die Polarisation der Laserstrahlung beliebig; (3) Polarisator polarisiert die Laserstrahlung um 45° linear mit einem Kontrastverhältnis von $10^6 : 1$ und regelt mit Hilfe der $\frac{\lambda}{2}$ -Platte die Leistung der Probelerstrahlung; (4) Objektiv mit Brennweite 10 mm und einem Arbeitsabstand von 25,5 mm; (5) Laser-Line Bandpassfilter auf 515 nm zentriert und rotierender Analysator mit einem Kontrastverhältnis von $10^6 : 1$; (6) Tubuslinse mit einer Bildweite von 200 mm; (7) detektierende Kamera mit einer Auflösung von 1024 x 1024 Pixeln

Die Strahlabmessungen der abbildenden Probelerstrahlung werden so gewählt, dass die reflektierten Strahlen vollständig ohne Begrenzungen durch Objektiv (4), Analysator (5) und Tubuslinse (6) propagieren können. Die Linsenkombination besteht aus einer Plankonvexlinse (L1) der Brennweite $f = 1000 \text{ mm}$, einer Plankonkavlinse (L2) der Brennweite $f = -50 \text{ mm}$ im Abstand von 957 mm und einer Plankonvexlinse (L3) der Brennweite $f = 100 \text{ mm}$ im Abstand von 176 mm von der zweiten Linse. Die Parameter des Linsensystems werden mittels Optikdesign so bestimmt, dass innerhalb der räumlich begrenzten optischen Weglänge der Probelerstrahlung möglichst wenig Abbildungsfehler entstehen und die Strahlabmessung $d_{\sigma,y} = 0,2 \text{ mm}$ beträgt. Der Vergleich der Abbildung mit und ohne Abbildungsfehler eines vorgegebenen Testmusters in der

Bildebene B in Abbildung 4.6 zeigt, dass vernachlässigbare sphärische Abbildungsfehler mit diesem Linsensystem auftreten. Eine Untersuchung der chromatischen Aberration ist aufgrund der geringen Bandbreite des Spektrums der Probelerstrahlung von 16 nm nicht notwendig. Das verwendete Linsensystem ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Die einzelnen Strukturen des Testmusters in Abbildung 4.6 sind nach der Propagation der Probelerstrahlung durch das abbildende Linsensystem noch klar zu erkennen.

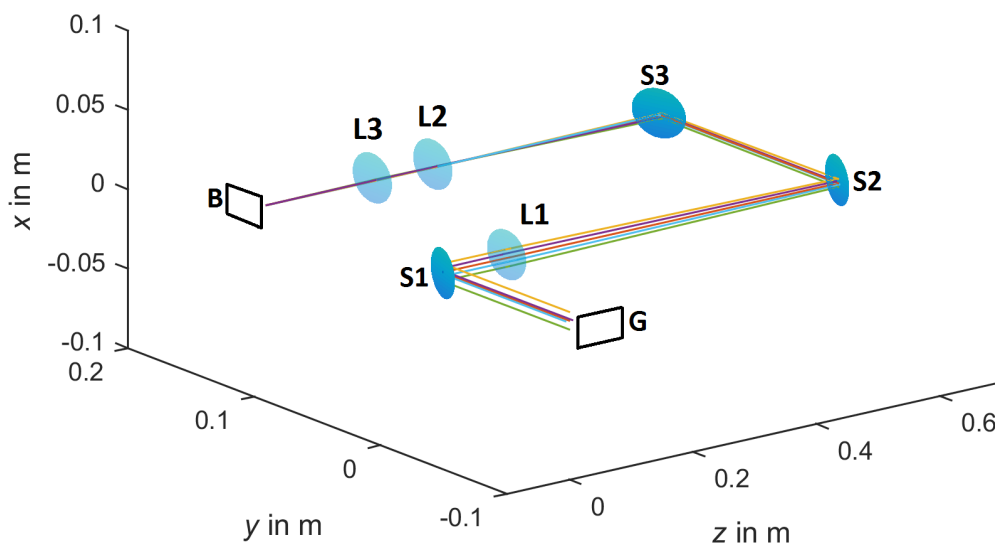


Abbildung 4.5: Strahlenoptisch simulierter Strahlengang der Probelerstrahlung durch den rechten Arm des Ellipsometers

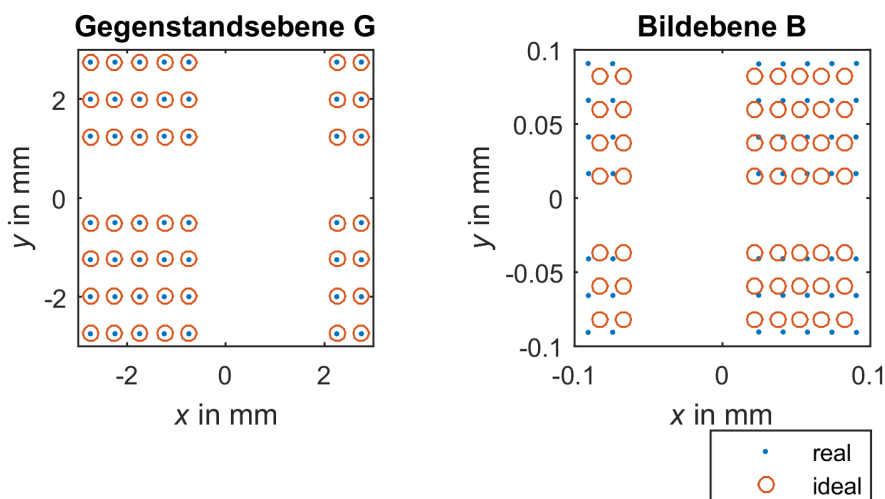


Abbildung 4.6: *Rechts*: simuliertes und ideales Testbild mit 4 unterschiedlichen Strukturen in der Gegenstandsebene G; *links*: Vergleich der resultierenden Testbilder in der Bildebene B mit und ohne Abbildungsfehler

Die strahlenoptisch und wellenoptisch simulierten Strahlenverläufe nach der Reflexion an der Probenoberfläche durch Objektiv (4), Analysator (5) und Tubuslinse (6) hindurch bis zum Kamerachip (7) sind in Abbildung 4.7 dargestellt.

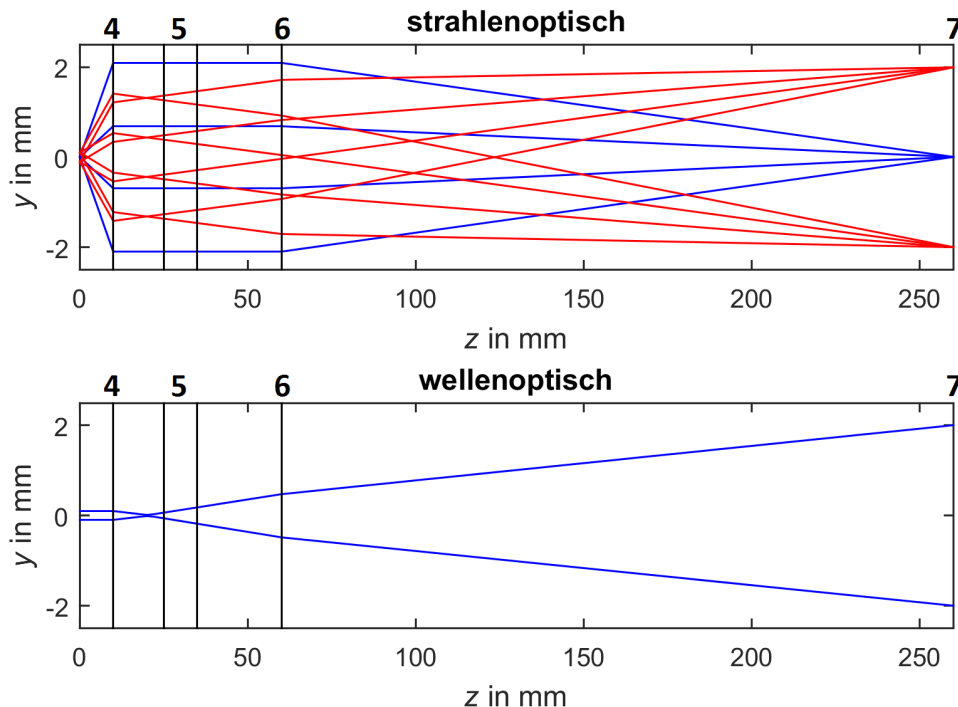


Abbildung 4.7: *Oben*: strahlenoptische Simulation des Strahlengangs durch Objektiv (4), Analysator (5) und Tubuslinse (6) zum Detektorchip der Kamera (7) im linken Arm des Ellipsometers; mit der numerischen Apertur des Objektivs (4) von $NA = 0,4$ und der Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ ergibt sich ein maximaler objektseitiger Öffnungswinkel der an der Probenoberfläche reflektierten Strahlung von $23,6^\circ$; Analysator (5) mit der Apertur von 10 mm und Tubuslinse (6) mit der Apertur von 30 mm beschneiden die reflektierte Probelerstrahlung nicht; die Probelerstrahlung wird nahezu verlustfrei auf dem Kamerachip (7) abgebildet; *unten*: wellenoptische Simulation des Strahlengangs durch Objektiv (4), Analysator (5) und Tubuslinse (6) zum Detektorchip der Kamera (7) im linken Arm des Ellipsometers; da im abbildenden System ein Zwischenfokus erzeugt wird, müssen die Zerstörschwellen der optischen Bauelemente und die Intensität der Probestrahlung beachtet werden

Mit Probelerstrahlung der Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$, der eingestellten Strahlabmessung von $d_{\sigma,y} = 0,2 \text{ mm}$ und der numerischen Apertur des Objektivs von $NA = 0,4$ ist nach der Reflexion der Laserstrahlung an der Probenoberfläche ein Öffnungswinkel der Laserstrahlung von bis zu $23,6^\circ$ möglich. Der maximale Strahlradius beträgt somit nach dem Objektiv etwa 2 mm und wird nicht vom Analysator (5) mit der Apertur von 10 mm und Tubuslinse mit der Apertur von 30 mm beschnitten. Die Strahlabmessungen der Probelerstrahlung sind so gewählt, dass die Zerstörschwellen der optischen Bauelemente im Zwischenfokus des Strahlengangs nicht überschritten werden.

Tabelle 4.1: Designwellenlängenbereiche der einzelnen optischen Bauelemente

Bauelement	Wellenlängenbereich in nm
dünne Linsen	500 - 530
Objektiv	480 - 1800
Tubuslinse	436 - 656

In Tabelle 4.1 sind die Designwellenlängenbereiche der einzelnen optischen Bauelemente im Strahlengang des Ellipsometers dargestellt. Das Ellipsometer ist für spektroskopische Ellipsometrie im Bereich $480 \text{ nm} \leq \lambda_{\text{Probe}} \leq 1800 \text{ nm}$ geeignet. Für diesen Spektroskopiewellenlängenbereich von VIS bis NIR müssen jedoch die Linsen zur Strahlformung und die Tubuslinse ausgetauscht werden.

4.2.3 Zeitliche Charakterisierung der Laserstrahlung

Die Laserstrahlung wird mit der Autokorrelationsmethode frequency-resolved optical gating (FROG) zeit- und spektralaufgelöst mit einem GRENOUILLE (Model 8-20, Fa. Swamp Optic) vermessen [28, 40]. Die gemessene normierte Intensität und die Phase der Laserstrahlung in Abhängigkeit von der Zeit direkt nach der Laserstrahlungsquelle sind in Abbildung 4.8 dargestellt.

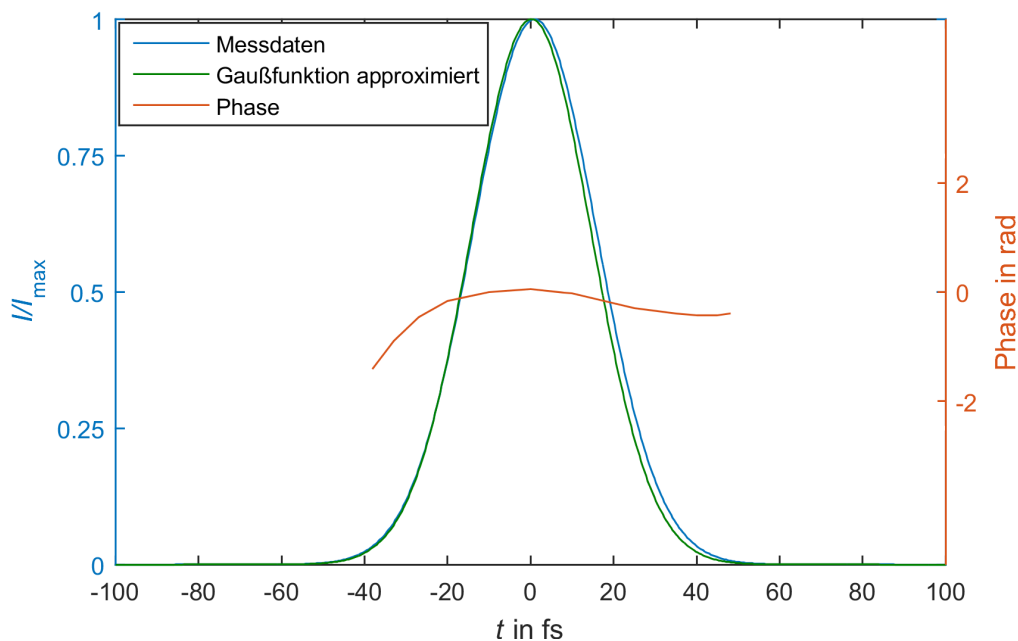


Abbildung 4.8: Zeitabhängige normierte gemessene Intensitätsverteilung und Phasenlage der Pumplaserstrahlung; die gemessene Intensitätsverteilung ähnelt stark der mathematisch approximierten Gaußverteilung

Die Pulsdauer wird über die Differenz der Zeiten t , für die die normierte Intensität I/I_{max} der Strahlung die Hälfte ihres Maximums annimmt, bestimmt (full width at half maximum).

Tabelle 4.2: Durchstrahltes Material und dazugehörige Gruppengeschwindigkeitsdispersionen von Pump- und Probelerstrahlung

Pumplaserstrahlung			
optisches Element	Material	L in mm	GVD in fs^2/mm
12	Fuses Silica	0,8	36,16
Probelerstrahlung			
optisches Element	Material	L in mm	GVD in fs^2/mm
L1	Fuses Silica	1,5	68,71
3	Calcite	15	145,81
L2	Fuses Silica	1,9	68,71
L3	Fuses Silica	2,5	68,71

Die so bestimmte minimale Pulsdauer der Laserstrahlung direkt nach der Laserstrahlungsquelle beträgt $\tau_H = 34$ fs. Die resultierenden Pulsdauern der Pulse von Pump- und Probelerstrahlung am Ort der Probenoberfläche müssen berechnet werden, da die Abmessungen des Autokorrelationsmessgeräts zu groß sind, um dieses in den Ellipsometrieaufbau zu integrieren. Die Pulsdauer der Laserstrahlung vergrößert sich aufgrund der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) beim Durchstrahlen eines Mediums [29]. Die resultierende Pulsdauer τ'_H wird über die Gleichung

$$\tau'_H = \frac{1}{\tau_H} \cdot \sqrt{\tau_H^4 + 16 \cdot \ln^2 2 \cdot (GVD \cdot L)^2} \quad (4.1)$$

bestimmt, wobei τ_H die vorherige Pulsdauer der Laserstrahlung, L die Länge des durchstrahlten Mediums und GVD die Gruppengeschwindigkeitsdispersion des durchstrahlten Mediums ist. In Tabelle 4.2 sind die eingesetzten optischen Elemente, deren Längenabmessungen und die dazugehörigen Gruppengeschwindigkeitsdispersionen [36] aufgelistet. Die resultierenden Pulsdauer der Laserstrahlung auf der Probenoberfläche betragen $\tau_{H,\text{Pump}} = 34$ fs für die Pumplaserstrahlung und $\tau_{H,\text{Probe}} = 180$ fs für die Probelerstrahlung.

4.3 Kalibrierung des Ellipsometers

4.3.1 Analysator und Polarisator

Polarisator und Analysator des Ellipsometers müssen auf einen definierten Winkel relativ zur Einfallsebene der Probelerstrahlung auf die Probenoberfläche eingestellt werden. Als Referenzgröße für die Polarisation dient dabei die an PMMA reflektierte Probelerstrahlung unter Einstrahlung im Brewsterwinkel $\theta = 56,2^\circ$ [30], da diese vollständig senkrecht zur Einfallsebene polarisiert ist. Der Einfallswinkel θ des Ellipsometers kann auf etwa $\pm 0,2^\circ$ genau eingestellt werden, wobei der relative Fehler der Reflektivität bei Einstrahlung im Brewsterwinkel kleiner 0,01 % ist.

Steht die Polarisationsachse des Analysators parallel zur Einfallsebene der Probelerstrahlung auf die Probenoberfläche, detektiert die Kamera keine Probelerstrahlung, wie in Abbildung 4.9 dargestellt ist. Dieser Analysatorwinkel ϕ wird als 90° definiert. Bei einem Analysatorwinkel von $\phi = 0^\circ$ transmittiert die senkrecht polarisierte reflektierte Probelerstrahlung nahezu vollständig durch den Analysator. Mit dem zur Einfallsebene auf die Probenoberfläche kalibrierten Analysator wird der Polarisator kalibriert. Der Einfallswinkel θ des Ellipsometers wird auf 90° eingestellt und kein Probenmaterial im Strahlengang positioniert. Der kalibrierte Analysator wird auf 135° gedreht. Die Kamera kann keine Intensität der Probelerstrahlung detektieren, wenn der Polarisator exakt auf 45° zur Einfallsebene der Probelerstrahlung ausgerichtet ist. Damit Gleichung 3.19 gilt, wird dieser Winkel von 45° fest eingestellt und während aller Messungen nicht verändert.

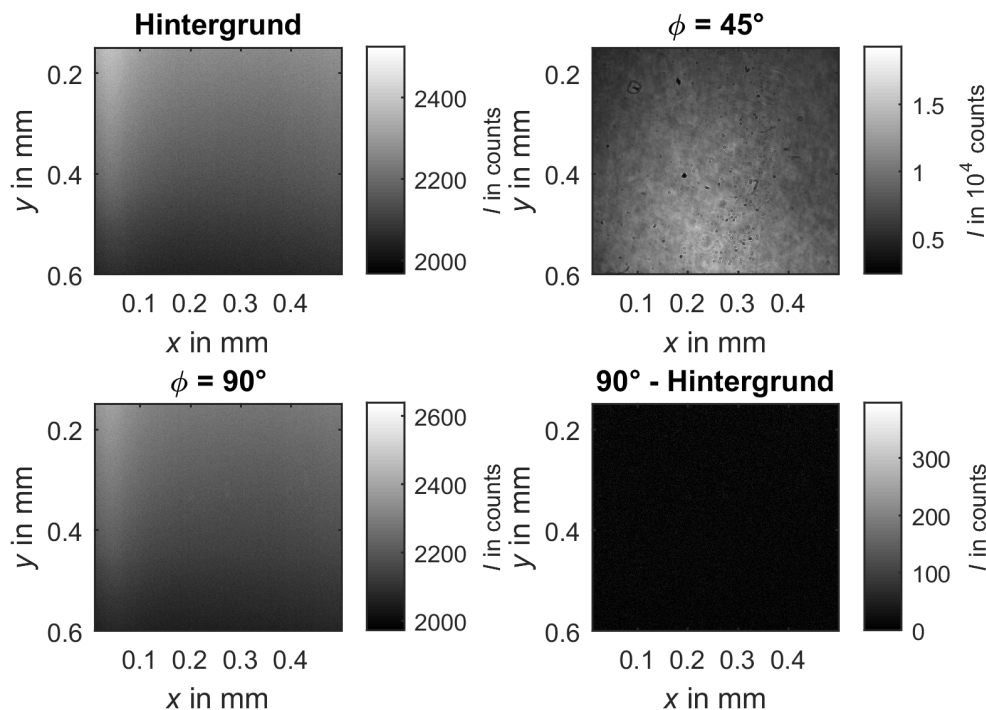


Abbildung 4.9: Gemessenes Rausch- und Intensitätsverhältnis der Kamera: *o.l.*: Hintergrundmessung der Kamera ohne Probelerstrahlung; *o.r.*: Messung der Kamera mit Analysatorwinkel $\phi = 45^\circ$; *u.l.*: Analysator um 90° zur Polarisation der reflektierten Probelerstrahlung gedreht; *u.r.*: Differenz der Messungen mit um 90° gedrehten Analysator und Hintergrundmessung, die restlichen Counts entstehen durch thermisches und elektronisches Rauschen und ergeben bei einer detektierten Strahlung mit über 30000 Counts einen Fehler von weniger als 1 %

4.3.2 Justage des Ellipsometers

Die Probenhalterung soll waagrecht ausgerichtet sein. Zudem müssen die beiden Ellipsometerarme den betragsmäßig gleichen Winkel zum Lot auf die Probenoberfläche

aufweisen, damit die auf der Probenoberfläche reflektierte Probelerstrahlung durch das abbildende System auf den Kamerachip trifft. Die Winkel der Ellipsometerarme werden mit einer mit Wasser gefüllten Schale kalibriert, da Wasser eine plane und waagrecht ausgerichtete Oberfläche ausbildet.

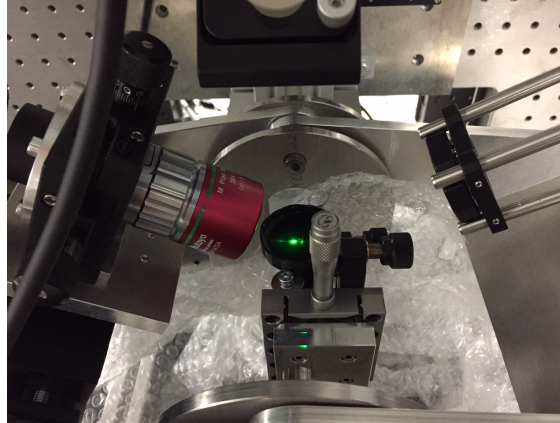


Abbildung 4.10: Kalibrierung des Strahlengangs innerhalb des Ellipsometers mit Wasser als Probenmaterial

Das Wasser wird, wie in Abbildung 4.10 dargestellt ist, an der Stelle positioniert, an der die eigentliche Probenoberfläche sein soll. Die Probelerstrahlung wird in einem beliebigen Einfallswinkel θ auf die Wasseroberfläche projiziert und der Winkel des linken Ellipsometerarms wird so lange variiert, bis die Probelerstrahlung den Chip der Kamera gleichmäßig ausleuchtet, siehe Abbildung 4.11 *links*.

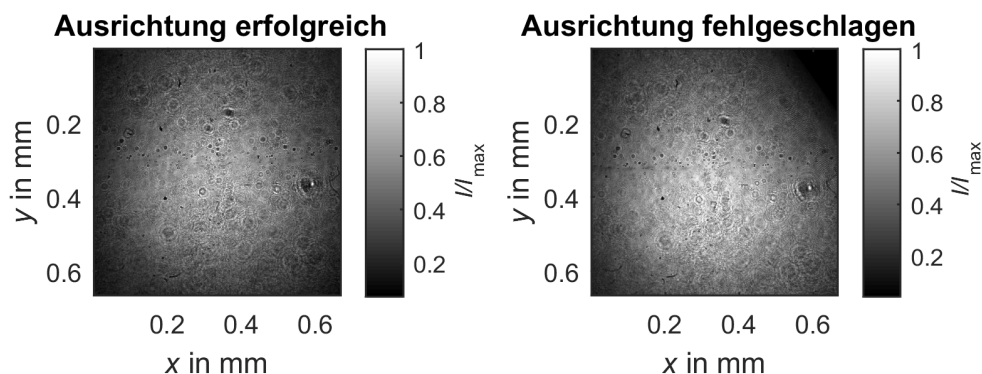


Abbildung 4.11: *Links*: erfolgreiche Ausrichtung der Probelerstrahlung; die Probelerstrahlung trifft mittig auf den Kamerachip und wird nicht im Strahlengang beschnitten; *rechts*: fehlerhaftes Ausrichten der Probelerstrahlung; die Probelerstrahlung trifft mittig auf den Kamerachip, wird aber oben rechts von der Analyatorfassung beschnitten, da die Probelerstrahlung schräg durch das Abbildende System verläuft

Die Ellipsometerarme sind damit gleichwinklig. Die Position der Probelerstrahlung auf dem Kamerachip wird als Referenzposition verwendet. Vor jeder neuen Messung muss die Probenoberfläche ausgerichtet werden, bis die Probelerstrahlung wieder die Referenzposition auf dem CCD-Chip aufweist. Da die Strahlgröße auf der Probenoberfläche

durch das Linsensystem so eingestellt ist, dass alle Strahlanteile auf den Detektorchip der Kamera gelangen, ist die Probenoberfläche automatisch ausgerichtet, wenn der Chip der Kamera gleichmäßig ausgeleuchtet ist.

4.3.3 Zeitliche Kalibrierung der Verzögerungsstrecke

Die Verzögerungsstrecke im Strahlengang der Pumplaserstrahlung muss so platziert werden, dass die maximale optische Weglänge vom Strahlteiler bis zur Probenoberfläche der Pumplaserstrahlung der optischen Weglänge der Probelerstrahlung entspricht. Um eine grobe Abschätzung zu erhalten, wird eine Fotodiode an die Stelle der Probenoberfläche gestellt, welche beide Pump- und Probelerstrahlung an diesem Ort detektieren kann. Damit kann der zeitliche Abstand der Pulse auf etwa eine halbe Nanosekunde genau bestimmt werden. Die so eingestellte Weglänge für die Probelerstrahlung beträgt ca. 7780 mm. Die Weglänge der Pumplaserstrahlung lässt sich mit der Verzögerungsstrecke von ca. 7020 mm bis 8220 mm variieren.

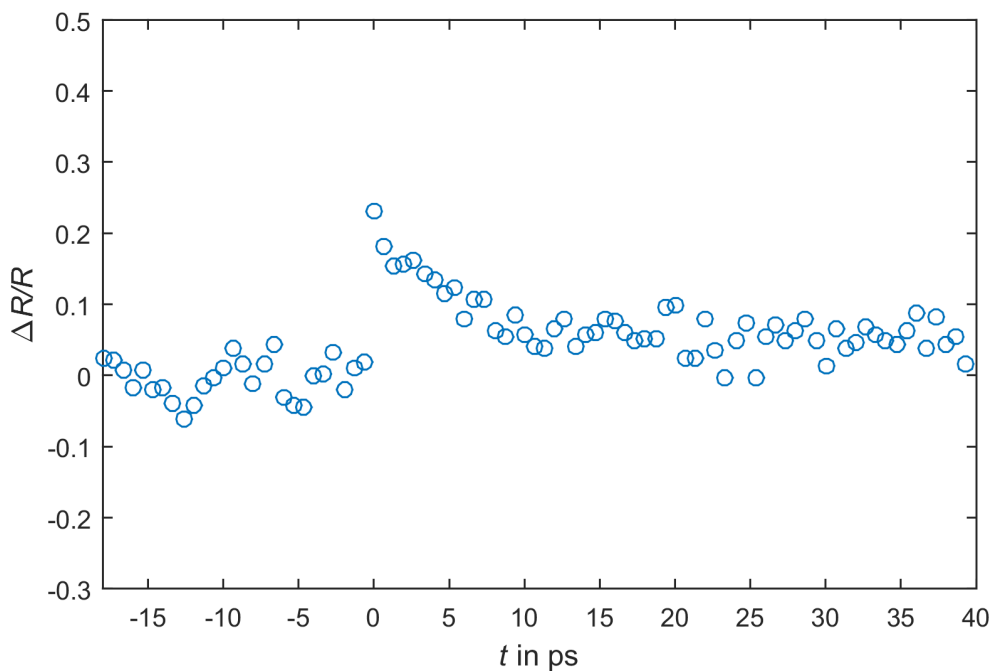


Abbildung 4.12: Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ einer Goldoberfläche während der Anregung der Probenoberfläche durch Pumplaserstrahlung der Fluenz $H_0 = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ in Abhängigkeit von der Zeit mit Zeitschritten von $\Delta t = 0,66 \text{ ps}$; der Zeitpunkt des ersten Auftretens einer Reflektivitätsänderung wird als zeitlicher Nullpunkt festgelegt

Eine genauere Abschätzung der Position der Spiegel der Verzögerungsstrecke, bei der die Pulse zeitgleich auf der Probenoberfläche ankommen, wird mittels Reflektometrie vorgenommen. Hierfür werden nacheinander Pulse der Pumplaserstrahlung auf die Probenoberfläche appliziert ohne Einzelpulsabtrag zu erzeugen. Nach jedem Puls wird die Verzögerungsstrecke um $50 \mu\text{m}$, begonnen bei 8220 mm, verfahren. Die Probeler-

strahlung wird jedesmal nach der Reflexion an der Probenoberfläche auf dem Kamerachip abgebildet, wodurch die durch die Pumplaserstrahlung hervorgerufene Reflektivitätsänderung der Probenoberfläche zu verschiedenen Zeiten ermittelt wird. Der Messpunkt, an dem die Reflektivitätsänderung einsetzt, wird in dieser Arbeit bei jeder Messung als zeitlicher Nullpunkt neu bestimmt. Im Beispiel in Abbildung 4.12 beträgt aufgrund der eingestellten relativen zeitlichen Schrittweite zwischen Pump- und Probelaaserstrahlung die Messgenauigkeit des zeitlichen Nullpunktes $\Delta t_0 = \Delta t = 0,66$ ps. Die bei jedem Experiment vorhandene Messgenauigkeit Δt_0 wird über $\Delta t_0 = \max \{ \Delta t, \tau_{H,Probe} \}$ bestimmt und beträgt somit minimal $\Delta t_0 = \tau_{H,Probe} = 180$ fs.

4.4 Charakterisierung der Probenoberflächen

Die für die Messungen verwendeten Proben sind unbeschichtetes Polymethylmethacrylat (PMMA), ein Siliziumwafer, ein mit SiO_2 beschichteter Silberspiegel, ein unbeschichteter und ein mit SiO_2 beschichteter Goldspiegel. Die Schichtdicken d von Gold, Silber und Si sind größer als die optische Eindringtiefe z_e der Probelaaserstrahlung und können somit als Substrate betrachtet werden. Damit wird ein Dielektrikum, ein Halbleiter und ein Metall ellipsometrisch untersucht und das konstruierte Ellipsometer anhand von beschichteten und unbeschichteten Probenoberflächen validiert.

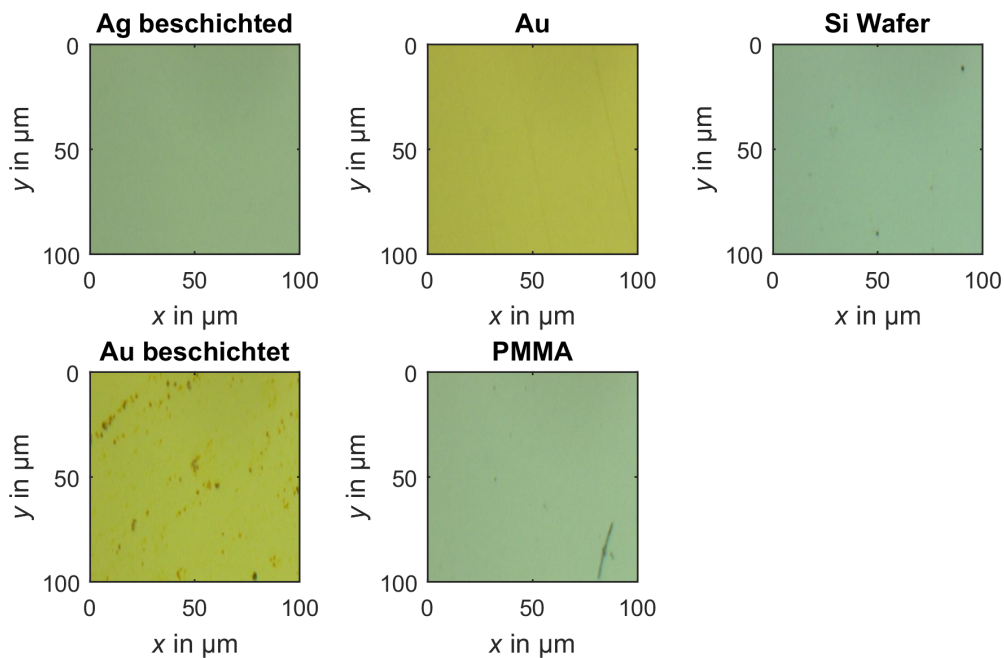


Abbildung 4.13: Oberflächen einer mit SiO_2 beschichteten Silber- (*o.l.*) und Goldprobe (*u.l.*) und einer unbeschichteten Gold- (*m.o.*), PMMA- (*m.u.*) und Siliziumprobe (*r.o.*, Lichtmikroskopie)

Die Oberflächen aller für die Messungen verwendeten Probenmaterialien werden mittels Lichtmikroskopie vermessen und sind in Abbildung 4.13 dargestellt.

Tabelle 4.3: gemessene Rauheiten der verwendeten Probenoberflächen

Probenmaterial	R_a in nm
Ag beschichtet	$14,9 \pm 5,3$
Au unbeschichtet	$2,7 \pm 0,8$
Au beschichtet	$5,9 \pm 4,4$
PMMA	$20,4 \pm 17,1$
Si	$10,0 \pm 7,2$

Der Silberspiegel und beide Goldspiegel sind von der Firma Thorlabs und wurden mittels Electron Beam Deposition hergestellt. Die Rauheiten R_a und die dazugehörigen Standardabweichungen σ aller Proben werden mit einem taktilen Profilometer vermessen und sind in Tab 4.3 aufgelistet. Die Rauheiten aller Probenoberflächen sind geringer als $\frac{\lambda_{\text{Probe}}}{20}$ der verwendeten abbildenden Laserstrahlungen, wodurch Fehler innerhalb der Messungen durch bspw. Streuungen der einfallenden Laserstrahlung gering gehalten werden [10, 38].

Für alle folgenden Experimente der Pump-Probe-Ellipsometrie und Pump-Probe-Reflektometrie wird der unbeschichtete Goldspiegel als Probenoberfläche verwendet, da Gold ein oft verwendetes Material in der Beschichtungstechnologie ist und die direkte Einwirkung der Pumplaserstrahlung auf die Materialoberfläche ohne Schutzschicht untersucht werden kann. Die relative Reflektivitätsänderung wird in Abhängigkeit der Wellenlänge der Probelerstrahlung λ_{Probe} und in Abhängigkeit der Fluenz H_0 der Pumplaserstrahlung untersucht, da in Abhängigkeit von der Fluenz das Material aufgrund unterschiedlicher Ablationsmechanismen entweder nicht, im sogenannten gentle oder im sogenannten strong Regime abgetragen wird, siehe Abbildung 4.14 [37].

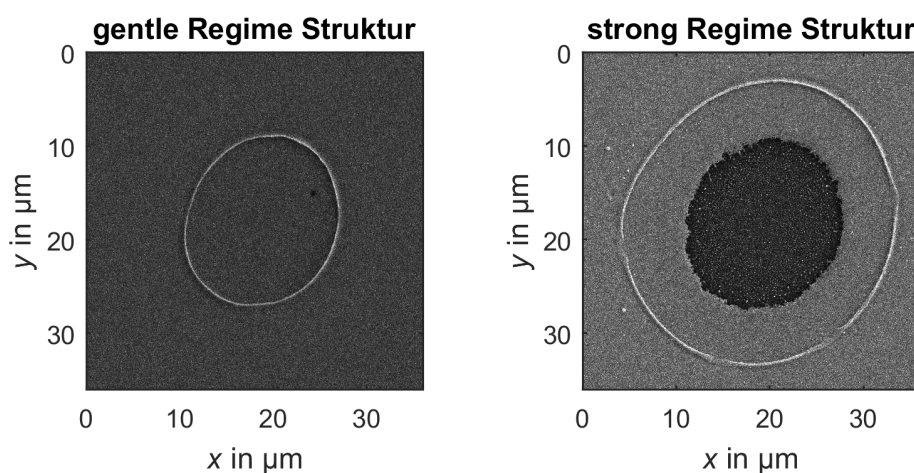


Abbildung 4.14: *Links*: erzeugte Struktur bei einer Fluenz der Pumplaserstrahlung zwischen den Schwellfluenzen von gentle und strong Abtrag mit $H_0 = 2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$; *rechts*: erzeugte Struktur bei einer Fluenz der Pumplaserstrahlung größer der Schwellfluenz für strong Abtrag mit $H_0 = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$

Die Fluenzen der Pumplaserstrahlung bei den folgenden Experimenten liegen dabei einmal unter der Schwellfluenz für gentle Abtrag ($H_0 < H_{\text{th, gentle}}$), zwischen den Schwellfluenzen für gentle und strong Abtrag ($H_{\text{th, gentle}} < H_0 < H_{\text{th, strong}}$) und über der Schwellfluenz für strong Abtrag ($H_0 > H_{\text{th, strong}}$). Die Schwellfluenzen im Fokus der Pumplaserstrahlung der Goldprobe werden mit der Methode des quadrierten Durchmessers der durch Einzelpulse erzeugten Abtragsstrukturen, aufgetragen gegenüber dem natürlichen Logarithmus der Fluenz, ermittelt, siehe Abbildung 4.15 [24].

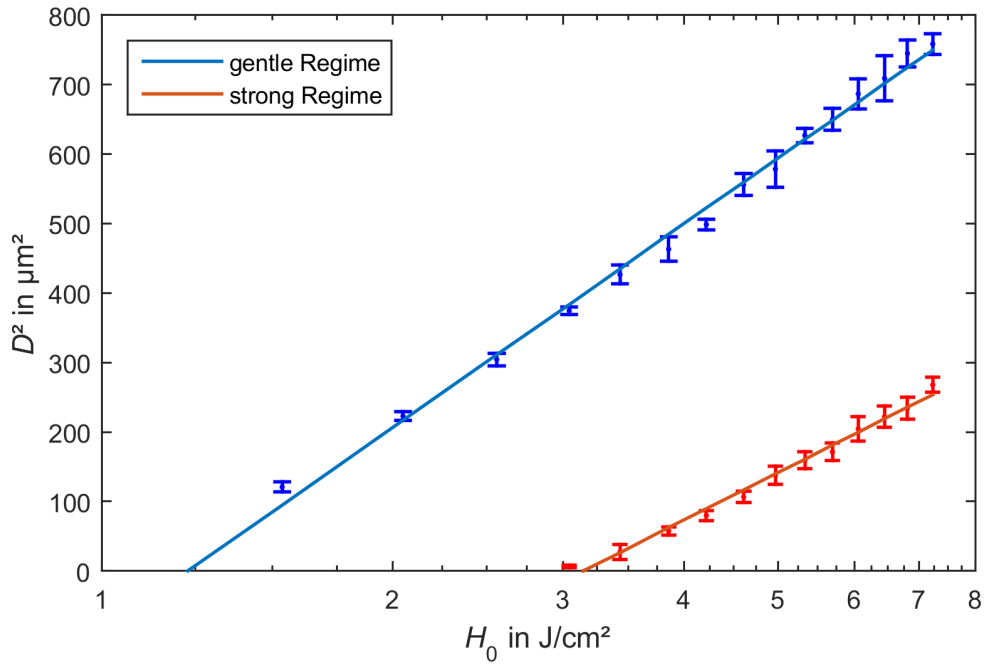


Abbildung 4.15: Quadrat des Durchmessers der mittels Pumplaserstrahlung erzeugten Strukturen in Abhängigkeit der Fluenz der Pumplaserstrahlung für gentle und strong Abtrag

Die Schwellfluenzen für gentle und strong Abtrag betragen $H_{\text{th, gentle}} = 1,22 \pm 0,56 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ und $H_{\text{th, strong}} = 3,15 \pm 0,56 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$. Der resultierende Strahldurchmesser der Pumplaserstrahlung im Fokus beträgt $d_\sigma = 29,1 \mu\text{m}$, ermittelt aus dem Graphen für gentle Abtrag. Zur Bestimmung der Schwellfluenz für strong Abtrag $H_{\text{th, strong}}$ wird der gleiche Strahldurchmesser wie zur Bestimmung der Schwellfluenz für gentle Abtrag $H_{\text{th, gentle}}$ angenommen.

5 Ergebnisse und Diskussion

5.1 Ellipsometrie bei Raumtemperatur

Die Kalibrierung und Justage des Pump-Probe-Ellipsometers wird durch Ellipsometrie-messungen des Pump-Probe-Ellipsometers und dem Vergleich mit den Messergebnissen des kommerziellen Ellipsometers (Nanofilm_ep4, Fa. Accurion) und Literaturangaben zu n und k bei Raumtemperatur überprüft. Mittels Ellipsometrie mit rotierendem Analysator, siehe Kapitel 3.2, werden die komplexen Brechungsindizes von unbeschichtetem Gold, dem Halbleiter Silizium und dem Dielektrika PMMA, siehe Kapitel 4.4, bestimmt. Der Einfallswinkel der Probelerstrahlung beträgt dabei $\theta = 60^\circ$. Als Probe-strahlungen werden die Laserdiodenstrahlung mit $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$, siehe Kapitel 4.2.1 und die Probelerstrahlung, welche auch in den Pump-Probe-Experimenten eingesetzt wird, mit $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ verwendet, siehe Kapitel 4.2. Der komplexe Brechungsindex kann orts aufgelöst über die vermessene Probenoberfläche oder räumlich über das gesamte Bild oder einen Bildausschnitt gemittelt bestimmt werden. Die gemessenen räumlich gemittelten reflektierten normierten Intensitäten der reflektierten Probelerstrahlung an der Probenoberfläche und die approximierten Intensitätsverläufe I/I_{max} in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ bei $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ sind in Abbildung 5.1 dargestellt.

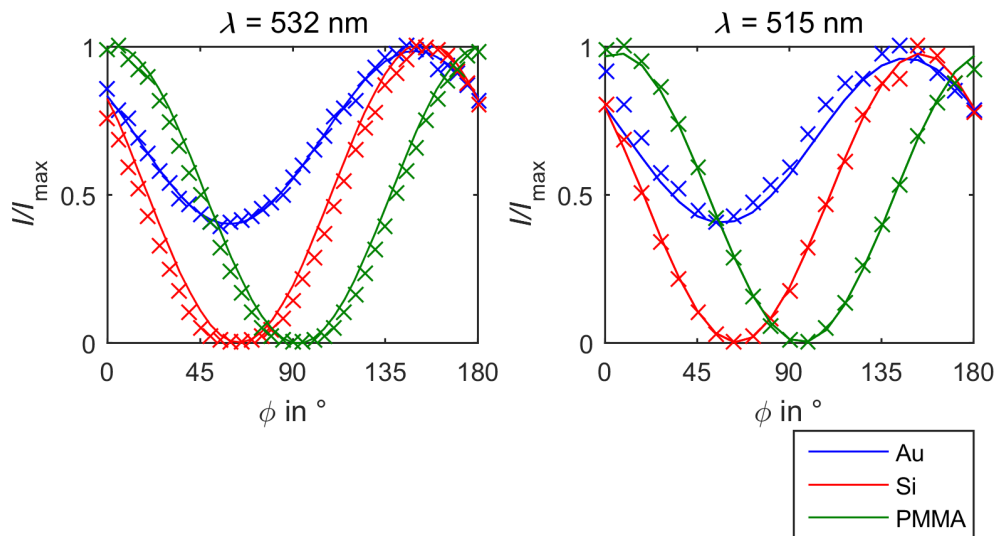


Abbildung 5.1: Normierte detektierte Intensitäten (Kreuz) der reflektierten Probelerstrahlung mit $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ und Approximation (Linie) einer Cosinusquadratfunktion für Au, Si und PMMA

Tabelle 5.1: Vergleich der mit dem Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer bestimmten Brechzahlen n und Extinktionskoeffizienten k mit Literaturwerten bei der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung

	Pump-Probe-Ellipsometer		Kommerzielles Ellipsometer		Literaturwerte	
Probe	n	k	n	k	n	k
Au	$0,44 \pm 0,02$	$2,01 \pm 0,02$	0,47	2,00	0,70	1,97 [33]
Si	$4,27 \pm 0,03$	$0,36 \pm 0,01$	4,23	0,34	4,22	0,06 [35]
PMMA	$1,49 \pm 0,01$	$0,00 \pm 0,01$	1,49	0,00	1,49	0,00 [34]

Tabelle 5.2: Vergleich der mit dem Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer bestimmten Brechzahlen n und Extinktionskoeffizienten k mit Literaturwerten bei der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung

	Pump-Probe-Ellipsometer		Kommerzielles Ellipsometer		Literaturwerte	
Probe	n	k	n	k	n	k
Au	$0,53 \pm 0,01$	$2,00 \pm 0,01$	0,49	2,17	0,54	2,14 [32]
Si	$4,40 \pm 0,01$	$0,29 \pm 0,03$	4,13	0,28	4,15	0,05 [35]
PMMA	$1,52 \pm 0,01$	$0,00 \pm 0,01$	1,52	0,00	1,49	0,00 [34]

Die Messwerte aller Proben liegen zu über 95 % im Konfidenzintervall der Approximationen $I/I_{\text{max}}(\phi)$ nach Gleichung 3.11. Wie in Kapitel 3.2 und 3.3 beschrieben, werden aus den ermittelten Cosinusquadratfunktionen über die Gleichungen 3.12 und 3.13 die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ bestimmt, über welche der komplexe Brechungsindex berechnet wird, siehe Gleichungen 3.18, 3.20 und 3.21. Da keine dünnen Schichten auf den verwendeten Probenoberflächen vorhanden sind, wird das Modell der Reflexion am Substrat angenommen, siehe Kapitel 3.3. Die sich ergebenden Brechzahlen n und Extinktionskoeffizienten k der Probenoberflächen mit den dazugehörigen Standardabweichungen σ für $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ werden mit Literaturwerten verglichen und sind in Tabelle 5.1 und 5.2 dargestellt. Die Abweichungen der Werte von n und k zwischen dem Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer sind kleiner 10 %. Abweichungen der Messergebnisse können dadurch zustande kommen, dass nicht an der exakt gleichen Position der jeweiligen Probenoberfläche mit den unterschiedlichen Ellipsometern der komplexe Brechungsindex \tilde{n} bestimmt wird. Weitere Fehlerquellen sind eine leichte Dejustage der Winkel der Ellipsometerarme und der Probenoberfläche. Der Vergleich mit den Literaturwerten ist begrenzt möglich, da der komplexe Brechungsindex u. a. auch von der Rauheit der Probe, der Kristallinität des Probenmaterials und deren Korngrenzen abhängig ist und diese sich mit hoher Wahrscheinlichkeit von denen in dieser Messung verwendeten Proben unterscheiden [10, 38]. Die resultierenden Werte für n und k sind somit auch vom Herstellungsprozess der Substrate abhängig.

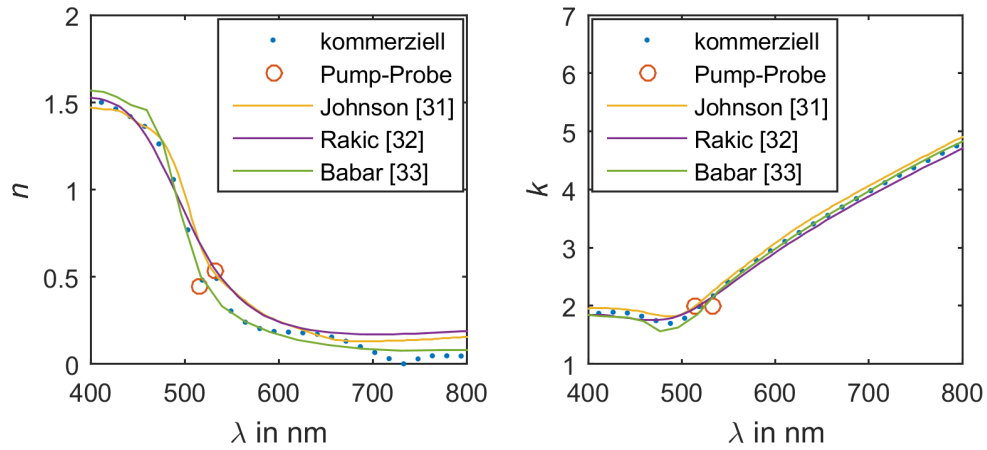


Abbildung 5.2: Vergleich der mit dem kommerziellen und dem Pump-Probe-Ellipsometer gemessenen Werte für n und k mit verschiedenen Literaturangaben im Wellenlängenbereich $350 \text{ nm} \leq \lambda_{\text{Probe}} \leq 800 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung

Die vom Pump-Probe-Ellipsometer gemessenen Werte für n und k werden mit denen vom kommerziellen Ellipsometer und drei Literaturangaben im Wellenlängenbereich $350 \text{ nm} \leq \lambda_{\text{Probe}} \leq 800 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung in Abbildung 5.2 verglichen.

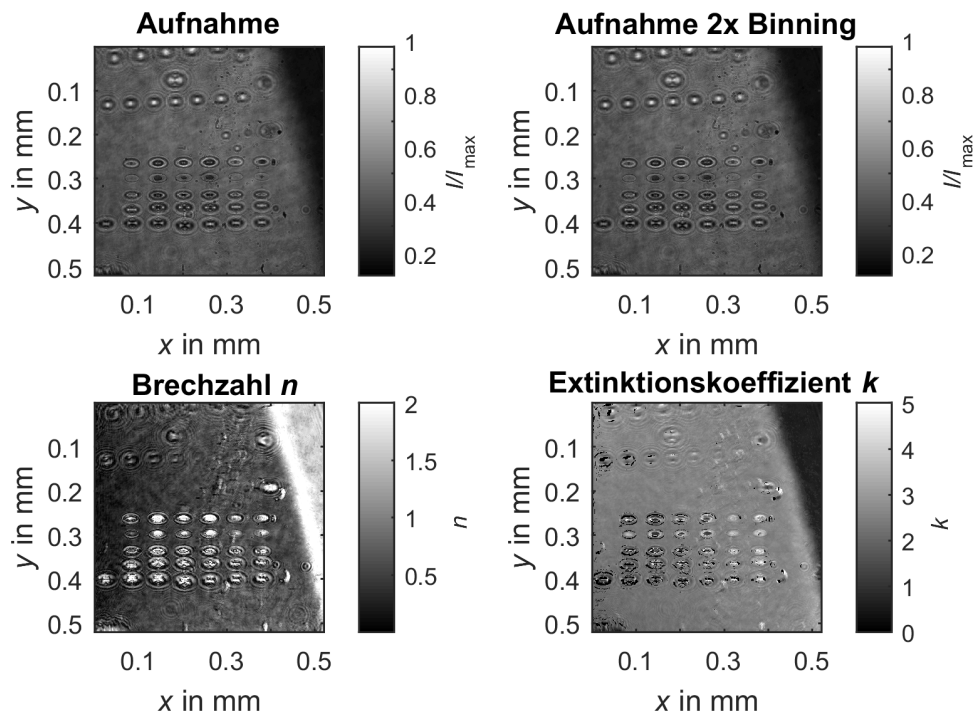


Abbildung 5.3: *O.l.*: Bild einer strukturierten Goldoberfläche, rechts im Bild ist schwarz der Rand der Probenoberfläche zu erkennen; *o.r.*: Bild nach 2x Binning; *u.l.*: Verteilung der ortsabhängigen Brechzahl n ; *u.r.*: Verteilung des ortsabhängigen Extinktionskoeffizienten k

Im Gegensatz zur räumlich gemittelten Ellipsometrie bietet die ortsaufgelöste Ellipsometrie in Abbildung 5.3 eine detaillierte Darstellung von \tilde{n} über den betrachteten schar-

fen Probenoberflächenausschnitt. Aufgrund des schrägen Einfalls der Probelerstrahlung mit $\theta = 60^\circ$ ist nur ein Streifen um $y = 0,275 \pm 0,025$ mm scharf abgebildet. Die unstrukturierte Probenoberfläche nimmt etwa die Werte $n = 0,5$ und $k = 2,0$ an, was dem komplexen Brechungsindex von Gold entspricht und sich mit den räumlich gemittelten Ellipsometrieergebnissen deckt. Aufgrund der Schmelze und Ablation des Materials und der somit veränderten Topographie unterscheiden sich die Werte von n und k innerhalb der Strukturen von n und k der unstrukturierten Probenoberfläche.

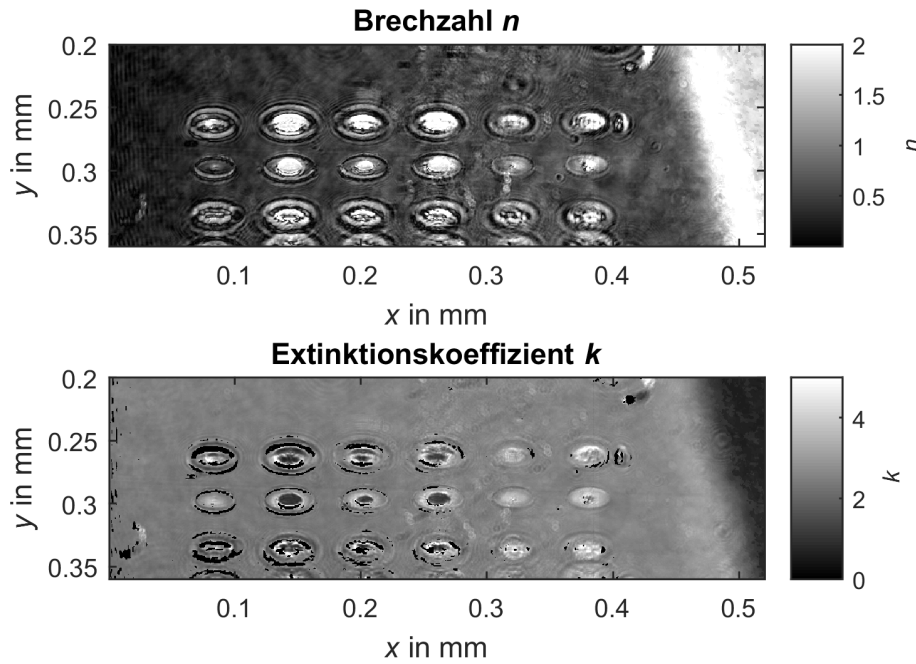


Abbildung 5.4: Vergrößert dargestellte räumliche Verteilungen der Brechzahl n und Extinktionskoeffizient k von mit unterschiedlichen Fluenzen erzeugten Strukturen

Das Gebiet innerhalb der Schärfentiefe des abbildenden Systems für n und k der Struktur ist in Abbildung 5.4 vergrößert dargestellt. Die Berechnungsdauer des orts aufgelösten komplexen Brechungsindex ist wesentlich höher als die Berechnungsdauer des gemittelten komplexen Brechungsindex. Die Berechnung einer orts aufgelösten Verteilung für n und k mit 1024×1024 Pixeln dauert etwa 18 h. Eine verringerte Auflösung der betrachteten Verteilungen durch Zusammenfassen und Mitteln der Grauwerte der Pixel in x - und y -Ausdehnung (Binning) verringert die Berechnungszeit um den jeweiligen Faktor in jeweils x - und y -Richtung. Bei 4×4 -fachem Binning sind die einzelnen Strukturen der Verteilungen von n und k bei moderater Rechendauer noch ausreichend gut aufgelöst.

Die in Kapitel 4.3 beschriebenen Methoden zur Kalibrierung des Pump-Probe-Ellipsometers sind erfolgreich. Die gemessenen Brechzahlen und Extinktionskoeffizienten des Pump-Probe-Ellipsometers, des kommerziellen Ellipsometers und der Literatur stimmen mit der notwendigen Genauigkeit überein. Somit können weitere Messungen, wie Schichtdickenbestimmung oder Pump-Probe-Ellipsometrie durchgeführt werden.

5.2 Schichtdickenbestimmung bei Raumtemperatur

Im Folgenden wird das Auflösungsvermögen des Pump-Probe-Ellipsometers bei der Bestimmung von n , k und d einer dünnen Schicht bei Raumtemperatur bestimmt, indem die ermittelten Werte mit gemessenen Werten eines kommerziellen Ellipsometers verglichen werden. Dafür werden die Schichtdicken eines mit einer SiO_2 -Schicht beschichteten Goldspiegels, eines mit einer SiO_2 -Schicht beschichteten Silberspiegels und eines Siliziumwafers, auf dem sich durch Oxidation eine dünne SiO_2 -Schicht gebildet hat, mit beiden Geräten bestimmt. Die beschichteten Materialien Silber, Gold und Silizium werden als Substrate angenommen, da bei allen $d > z_e$ gilt. Die Schichtdicken und komplexen Brechungsindizes der drei Probenoberflächen werden bei den Wellenlängen $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ bestimmt, siehe Kapitel 3.4 und 3.5. Die an die gemessenen Werte für Δ und Ψ approximierten Dispersionsverläufe von Δ und Ψ setzen sich dabei aus den Literaturwerten der Dispersionsverläufe des jeweiligen Substrats [31,34,35] und den berechneten Dispersionsverläufen mit veränderlichen n , k und d zusammen. Der veränderliche Einfallswinkel θ beträgt dabei jeweils 56° , 60° , 65° und 70° . Die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ werden, da die optischen Eigenschaften auf der gesamten Probenoberfläche als konstant angenommen werden, über das gesamte aufgenommene Bild gemittelt bestimmt. Die Messdaten für Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ und die dazugehörigen approximierten Dispersionsverläufe für die Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ sind in Abbildung 5.5 für alle drei Proben dargestellt.

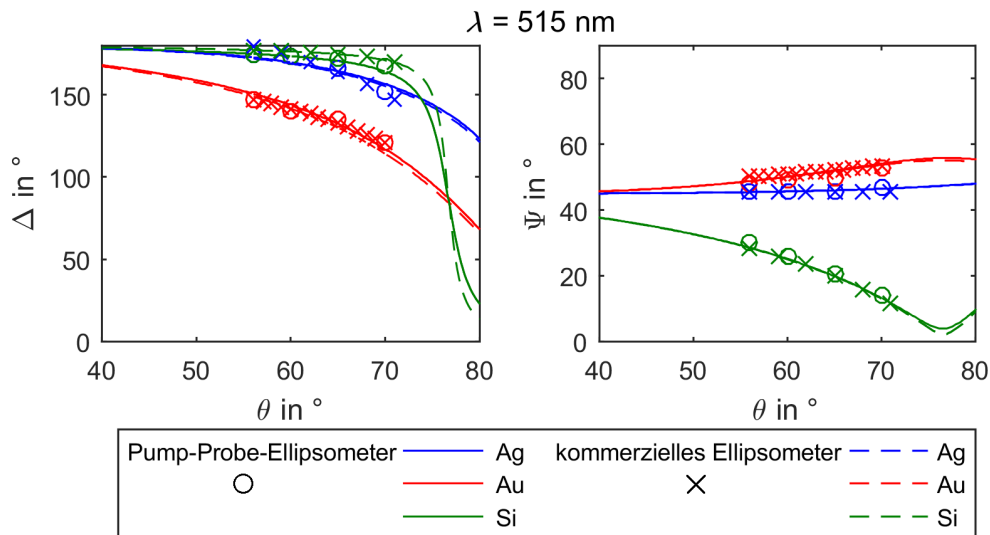


Abbildung 5.5: Messdaten und approximierten Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe (Kreis) und kommerziellem Ellipsometer (Kreuz) bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ für eine SiO_2 -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat

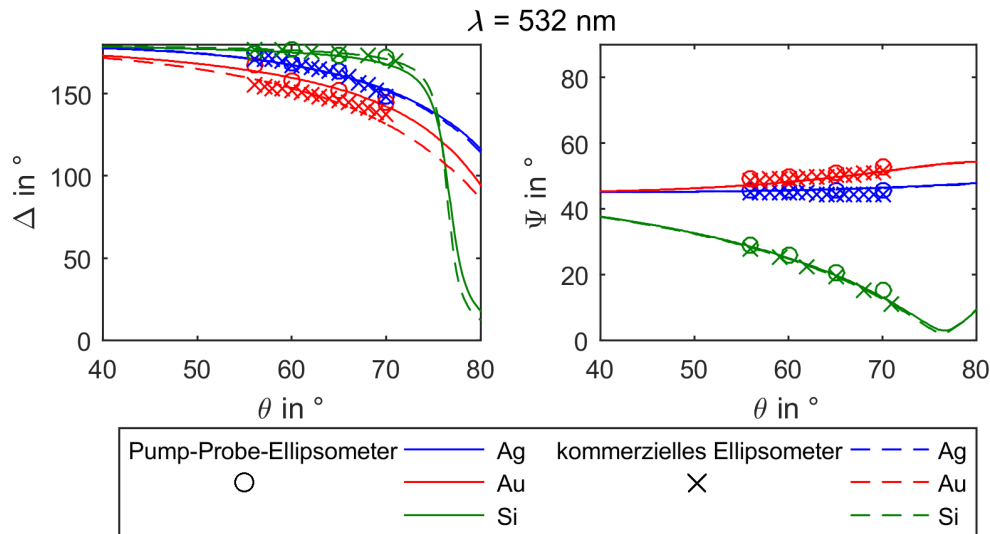


Abbildung 5.6: Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe (Kreis) und kommerziellem Ellipsometer (Kreuz) bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ für eine SiO_2 -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat

Tabelle 5.3: Absolute und relative Abweichung der Messwerte von Δ und Ψ von Pump-Probe und kommerziellem Ellipsometer bei den Wellenlängen $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$

Probe	$\lambda = 515 \text{ nm}$				$\lambda = 532 \text{ nm}$			
	Abweichung in $^\circ$		Abweichung in %		Abweichung in $^\circ$		Abweichung in %	
	Δ	Ψ	Δ	Ψ	Δ	Ψ	Δ	Ψ
SiO_2 auf Ag	3,5	0,8	2,0	2,0	2,8	0,5	1,6	1,0
SiO_2 auf Au	0,7	1,1	0,6	2,1	11,4	0,4	7,3	1,5
SiO_2 auf Si	2,3	1,4	1,2	2,3	1,8	1,3	1,4	4,3

Die Messdaten für Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ und die dazugehörigen approximierten Dispersionsverläufe für die Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ sind in Abbildung 5.6 für alle drei Proben dargestellt. Im Anhang A in Abbildung A.1 und A.2 sind die berechneten Dispersionsverläufe für Δ und Ψ für jedes Material separat dargestellt. Die vom Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer gemessenen Daten für Δ und Ψ sind bei allen Proben und beiden Wellenlängen der einfallenden Probelerstrahlung annähernd gleich. Die größte Abweichung weisen die Messwerte von Δ bei der SiO_2 -Schicht auf Au bei $\lambda = 532 \text{ nm}$ auf. Eine mögliche Fehlerquelle hierfür ist, dass die Schichtdicken nicht an der exakt gleichen Position des Au-Spiegels mit den verschiedenen Ellipsometern bestimmt wurden. Die gemittelten absoluten und relativen Abweichungen der Messwerte voneinander für beide Wellenlängen λ_{Probe} und alle Probenmaterialien sind in Tabelle 5.3 dargestellt. Die Abweichungen der mit dem Pump-Probe und dem kommerziellen Ellipsometer gemessenen Ellipsometrieparameter Δ und Ψ sind kleiner 10 %.

Tabelle 5.4: Berechnete Schichtdicken d und Brechzahlen n für SiO₂ auf Silber, Gold und Silizium bei den Wellenlängen $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$

	Pump-Probe-Ellipsometer		kommerzielles Ellipsometer	
$\lambda = 515 \text{ nm}$				
Probe	d in nm	n	d in nm	n
SiO ₂ auf Ag	$89,1 \pm 0,4$	$1,39 \pm 0,01$	$88,8 \pm 0,5$	$1,42 \pm 0,02$
SiO ₂ auf Au	$80,7 \pm 4,1$	$1,41 \pm 0,03$	$76,3 \pm 3,3$	$1,44 \pm 0,05$
SiO ₂ auf Si	$3,7 \pm 0,4$	$1,50 \pm 0,03$	$2,3 \pm 0,2$	$1,46 \pm 0,01$
$\lambda = 532 \text{ nm}$				
SiO ₂ auf Ag	$88,1 \pm 0,4$	$1,39 \pm 0,02$	$91,7 \pm 0,7$	$1,39 \pm 0,02$
SiO ₂ auf Au	$75,9 \pm 3,8$	$1,53 \pm 0,04$	$76,3 \pm 5,1$	$1,51 \pm 0,05$
SiO ₂ auf Si	$2,4 \pm 0,6$	$1,49 \pm 0,01$	$2,4 \pm 0,2$	$1,45 \pm 0,01$

Wie oben erwähnt wird zur Berechnung von n , k und d ein Dispersionsmodell von Δ und Ψ an die Messwerte von Δ und Ψ approximiert, siehe Kapitel 3.5. Dieses Dispersionsmodell besteht aus einem Substrat, einer Schicht und dem Umgebungsmedium Luft. Die Dispersionsmodelle der Substrate bilden die Verläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ der Laserstrahlung von den jeweiligen Proben Silber, Gold und Silizium [31, 35]. Das Dispersionsmodell der Schicht berechnet sich aus den Parametern Brechzahl n , Extinktionskoeffizient k und Schichtdicke d . Da SiO₂ ein Dielektrikum ist, wird der Extinktionskoeffizient $k = 0$ und entfällt als Parameter für die mathematische Approximation. Die resultierenden Ergebnisse für die Schichtdicken d und die Brechzahlen n sind in Tabelle 5.4 dargestellt. Die berechneten Dispersionsverläufe von Δ und Ψ aus den Messwerten vom Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer sind für beide Wellenlängen der Probelerstrahlung bei allen Proben fast identisch. Auch hier besitzen die Messwerte von Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer für d und n bei der SiO₂-Schicht auf Au die größte Abweichung, was aus den Abweichungen von Δ resultiert. Die ermittelten Schichtdicken d und Brechzahlen n vom Pump-Probe und kommerziellen Ellipsometer stimmen mit einer Abweichung von weniger als 10 % überein.

Der Messvorgang zur Bestimmung der Schichtdicke kann, wie in Kapitel 3.5 beschrieben, durch einen festgelegten komplexen Brechungsindex \tilde{n} der Schicht und eine Abschätzung der Schichtdicke d beschleunigt werden. Die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ der mit SiO₂ beschichteten Siliziumprobe werden unter dem Einfallswinkel $\theta = 70^\circ$ und der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ der einfallenden Laserstrahlung bestimmt. Der komplexe Brechungsindex der SiO₂ Schicht ist bekannt und beträgt $n = 1,46$ und $k = 0$. In Abhängigkeit von der Periodendicke d_P der SiO₂ Schicht ergeben sich mehrere Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ als Lösung für einen gemessenen Wert von Δ und Ψ . Die Periodendicke beträgt $d_P = 188 \text{ nm}$, sodass 3 nm und 191 nm etc. mögliche Lösungen wären. Lässt sich die Schichtdicke vor der Messung mit einer Genauigkeit, welche kleiner als die Periodendicke d_P ist, abschätzen, kann die Schichtdicke bereits mit einem Messwert für Δ und Ψ bestimmt werden.

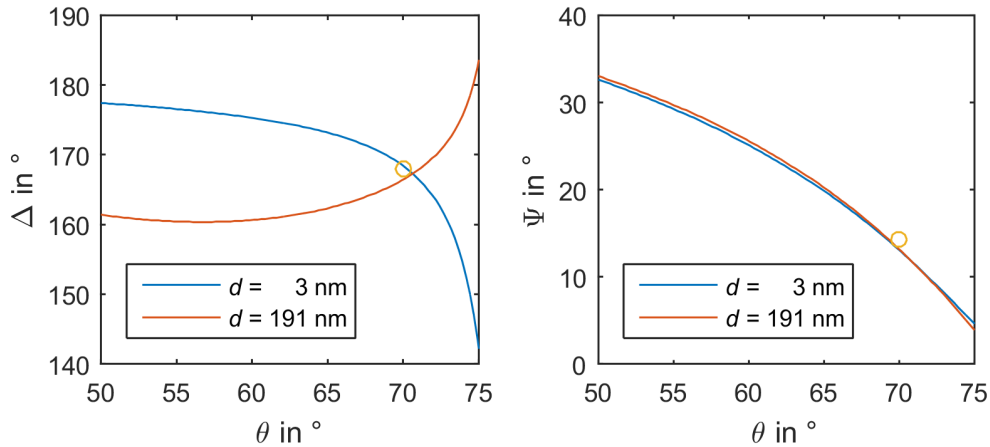


Abbildung 5.7: Ein Messwert für die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ hat mehrere Schichtdicken d im Abstand der Periodendicke d_P als Lösung; kann die Schichtdicke d abgeschätzt werden, reicht die Messung von Δ und Ψ unter einem Einfallswinkel θ und einer Wellenlänge λ_{Probe} der Probelerstrahlung zur Schichtdickenbestimmung aus

Die Messwerte für Δ und Ψ und das dazugehörige Schichtmodell sind in Abbildung 5.7 dargestellt. In diesem Beispiel liegt die vorher bestimmte Schichtdicke bei $d < 10 \text{ nm}$, wodurch nur $d = 3 \text{ nm}$ als Schichtdicke der SiO_2 Schicht in Frage kommt. Die Methode der Schichtdickenbestimmung unter Ausnutzung der Periodendicke d_P dient lediglich zur genaueren Abschätzung der Schichtdicke d . Die Schichtdickenbestimmung mit mehreren Messwerten von Δ und Ψ bei verschiedenen Einfallswinkeln θ oder Wellenlängen λ_{Probe} der Probelerstrahlung ist genauer, da evtl. Messfehler von Δ und Ψ bei der Approximation der Dispersionsmodelle von Δ und Ψ an mehrere Messpunkte weniger ins Gewicht fallen.

5.3 Pump-Probe-Reflektometrie

Die relative Reflektivitätsänderung einer unbeschichteten Goldoberfläche aufgrund der Erwärmung durch Pumplaserstrahlung als Funktion der Zeit in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_{Probe} der Probelerstrahlung und der Fluenz H_0 der Pumplaserstrahlung wird mittels Pump-Probe-Reflektometrie gemessen. Die Probelerstrahlung wird mittels Polarisator vollständig parallel zur Einfallsebene polarisiert. Der Einfallswinkel von $\theta = 64,3^\circ$ der Probelerstrahlung auf die Probenoberfläche entspricht dem Brewsterwinkel, da unter Einstrahlung im Brewsterwinkel die höchste Sensitivität der Messung der relativen Reflektivitätsänderung erwartet wird. Die reflektierte Probelerstrahlung wird orts aufgelöst ohne Analysator über Objektiv und Tubuslinse von dem Kamerachip detektiert. Indem die Verzögerungsstrecke den optischen Weg der Pumplaserstrahlung variiert, siehe Kapitel 4.1, kann die durch Pumplaserstrahlung hervorgerufene Reflektivitätsänderung auf der Probenoberfläche zu unterschiedlichen Zeiten mit der Probelerstrahlung gemessen und als Bild abgespeichert werden.

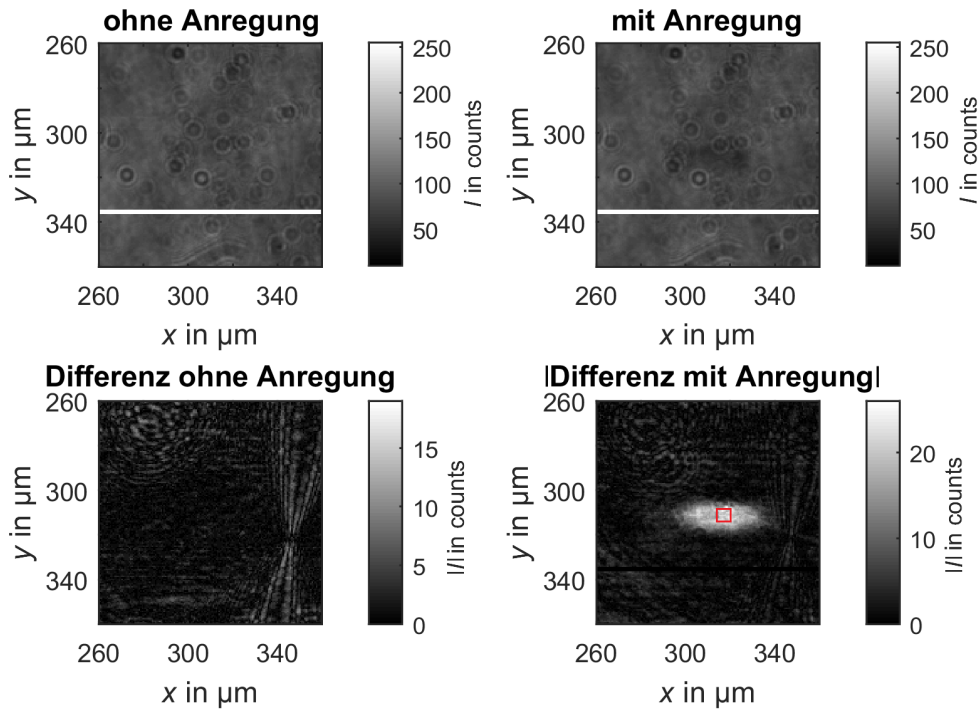


Abbildung 5.8: *o.l.*: erste gemessene Intensitätsverteilung der Reflektometrie ohne Reflektivitätsänderung; *o.r.*: Intensitätsverteilung einer Reflektometriemessung mit Reflektivitätsänderung; der gesamte Bereich unter der weißen Markierung wird für die Normierung der Bildhelligkeit verwendet; *u.l.*: Differenz zweier Messungen ohne Reflektivitätsänderung; *u.r.*: Differenz einer Aufnahme mit Reflektivitätsänderung und einer Aufnahme ohne Reflektivitätsänderung zur besseren Darstellung der Wirkzone der Pumplaserstrahlung

Um Helligkeitsschwankungen der einzelnen Bilder durch Hintergrundstrahlung oder evtl. Schwankungen der Leistung der Probelerstrahlung zu minimieren, wird jedes Bild auf die Intensität des ersten aufgenommenen Bildes normiert, dazu werden die Grauwerte der ersten Aufnahme über einen Bildbereich, in dem über die gesamte Messung keine Reflektivitätsänderung stattfindet, siehe Abbildung 5.8 unterhalb der weißen Linie, gemittelt. Der gemittelte Grauwert wird durch die gemittelten Grauwerte des gleichen Bildbereichs der anderen Bilder geteilt und der Quotient mit allen Grauwerten aller Bilder multipliziert.

Die mittels Pumplaserstrahlung der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$ hervorgerufene relative Reflektivitätsänderung einer Goldoberfläche wird mit zwei verschiedenen Wellenlängen (480 nm und 515 nm) der Probelerstrahlung über den Zeitraum $-20 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ mit einer relativen zeitlichen Schrittweite von $\Delta t = 0,66 \text{ ps}$ detektiert. Der Zeitpunkt 0 ps ist der Moment der ersten messbaren relativen Reflektivitätsänderung definiert. Für $t < 0 \text{ ps}$ bleiben die relativen Reflektivitätsänderungen beider Wellenlängen der Probelerstrahlung gleich Null mit $\Delta R/R = 0$.

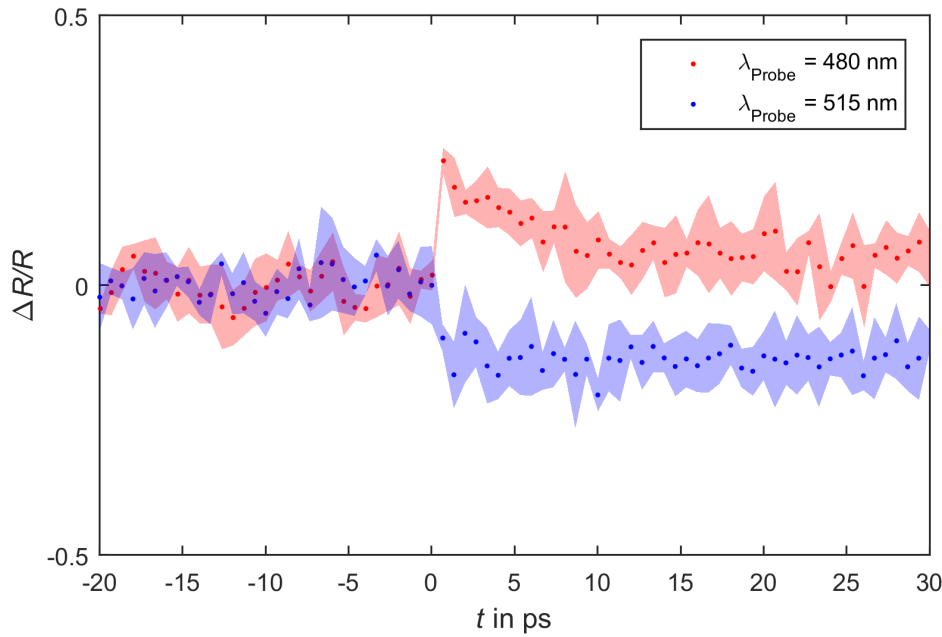


Abbildung 5.9: Relative Reflektivitätsänderungen der Probelaserstrahlung bei den Wellenlängen 480 nm und 515 nm einer Goldoberfläche während der Bestrahlung mit Pumplaserstrahlung der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$

Zum Zeitpunkt $t = 0$ ps ändern sich die relativen Reflektivitätsänderungen beider Wellenlängen abrupt, für $\lambda_{\text{Probe}} = 480$ nm steigt die relative Reflektivitätsänderung auf etwa 20 %, für $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm sinkt die relative Reflektivitätsänderung auf etwa –10 %, siehe Abbildung 5.9. Ab etwa $t > 2$ ps bleibt die relative Reflektivitätsänderung für $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm im restlichen betrachteten Zeitbereich in etwa konstant. Die relative Reflektivitätsänderung bei $\lambda_{\text{Probe}} = 480$ nm sinkt ab etwa $t > 1$ ps auf etwa 8 % und bleibt ab $t > 10$ ps in etwa konstant. Die positive relative Reflektivitätsänderung bei $\lambda_{\text{Probe}} = 480$ nm und die negative relative Reflektivitätsänderung bei $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm sind auf die Zustandsdichteverteilung der Elektronen von Gold und der Erwärmung der Probenoberfläche durch die Pumplaserstrahlung zurückzuführen, siehe Kapitel 3.6. Andere Literaturen zeigen eine identische Wellenlängenabhängigkeit der relativen Reflektivitätsänderung [15, 21]. Das Leitungsband in Gold wird durch das s - und p -Band gebildet. Das d -Band ist das letzte vollbesetzte Energieband, aufgrund der höheren Stabilität eines vollbesetzten $5d$ -Bandes gegenüber einem vollbesetzten $6s$ -Band [39]. Die Interband-Übergangsschwelle zur Anregung eines Übergangs von Elektronen aus dem d - ins s -Band beträgt für Gold $E_{\text{ITT}} = 2,47$ eV, was Photonen der Wellenlänge $\lambda = 500$ nm entspricht [15]. Photonen einer höheren Energie bzw. kleineren Wellenlänge, die auf die Goldoberfläche gestrahlt werden, führen bei Raumtemperatur zu einem Interbandübergang der Elektronen aus dem d -Band ins s -Band und werden absorbiert, wodurch die Reflektivität für $\lambda < 500$ nm gering ist. Photonen niedrigerer Energie bzw. größerer Wellenlänge können keinen Interbandübergang der Elektronen hervorrufen und werden an den quasifreien Elektronen des Leitungsbandes des Metalls reflektiert, wodurch sich eine höhere Reflektivität für Wellenlängen $\lambda > 500$ nm ergibt.

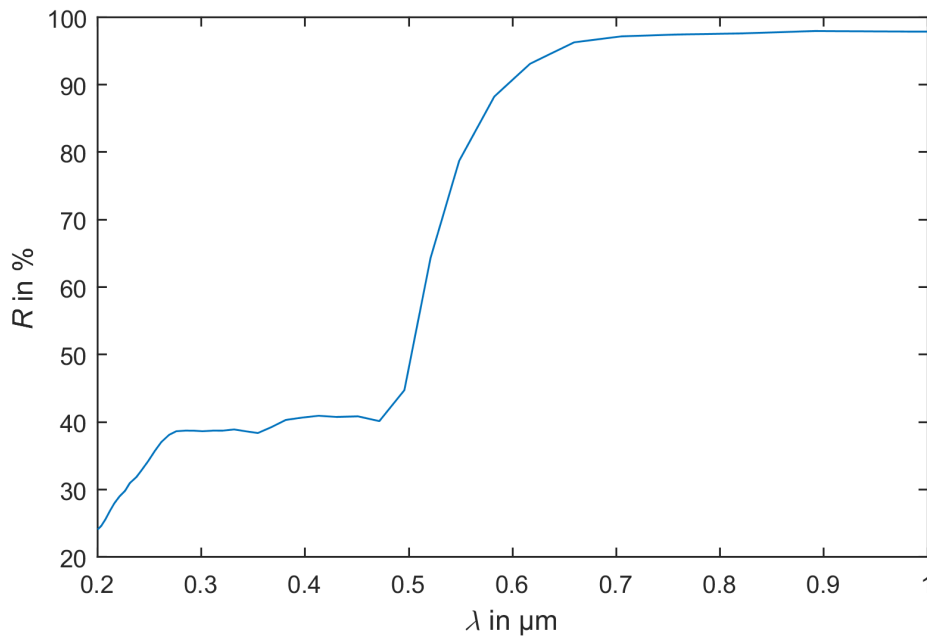


Abbildung 5.10: Anhand der Dispersionsverläufe von n und k [31] über die Fresnel-Gleichungen berechnete Reflektivität als Funktion der Wellenlänge für Gold

Der aus Literaturwerten für n und k [31] mit den Fresnel-Gleichungen berechnete Verlauf der Reflektivität von Gold in Abhängigkeit der Wellenlänge λ in Abbildung 5.10 stellt die unterschiedlichen Reflektivitäten von Photonen mit $\lambda < \lambda(E_{\text{ITT}})$ und $\lambda > \lambda(E_{\text{ITT}})$ dar. Bei Übergängen von Elektronen von einem Energieband in ein anderes ist zu beachten, dass nur Übergänge erlaubt sind, welche den Energie- und Impulserhaltungssatz erfüllen und bei denen der Endzustand einen freien Zustand im Bändermodell darstellt, siehe Abbildung 5.11 *links*. Da der Impuls der Photonen $\hbar \cdot \vec{k}$ sehr gering ist und diese keine Impulsänderung der Elektronen verursachen können, verlaufen die Übergänge im Energie-Wellenzahlvektor-Diagramm in Abbildung 5.11 senkrecht nach oben. Ist kein freier Zustand, der diese Bedingungen erfüllt, vorhanden, wird ein zusätzlicher dritter Stoßpartner benötigt. Wenn der Stoßpartner des Photons nach dem Stoß unter Erfüllung aller Bedingungen einen energetisch höheren Zustand im Bändermodell einnimmt, wird das Photon absorbiert, falls nicht, wird die Energie wieder in Form eines Photons abgegeben und das Photon wird reflektiert.

Eine durch Pumplaserstrahlung hervorgerufene vergrößerte Elektronentemperatur führt zu einer Verbreiterung der Fermikante, siehe Kapitel 3.6. Oberhalb der Fermikante werden mehr Zustände besetzt, weniger freie Zustände sind vorhanden und die Absorption von Photonen der Energie $E \geq E_{\text{ITT}}$ sinkt, siehe Abbildung 5.11 *rechts*. Die Reflektivität der Probelerstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 480 \text{ nm}$ steigt somit durch Erwärmung der Probenoberfläche mittels Pumplaserstrahlung [15, 22]. Die Reflektivität der Probelerstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ nach der Anregung durch die Pumplaserstrahlung sinkt aufgrund der Verbreiterung der Fermikante. Probelerstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ kann somit Elektronen vom d - ins s -Band anre-

gen, der Absorptionsgrad steigt und die relative Reflektivität sinkt [15, 22, 44].

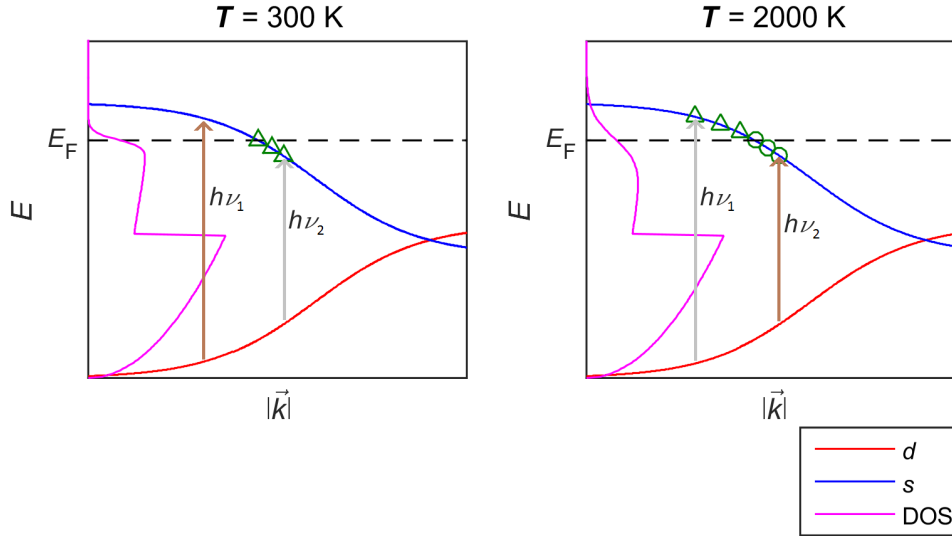


Abbildung 5.11: Schematische Darstellung der höchsten Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen des d - und s -Bandes und die dazugehörige Zustandsdichtevertielung (DOS) bei den Temperaturen $T = 0$ K und $T = 2000$ K; bei erhöhter Temperatur verbreitert sich die Fermikante der Zustandsdichtevertielung des s -Bandes, oberhalb der Fermienergie werden freie Zustände mit Elektronen (Dreiecke) besetzt und unterhalb der Fermienergie entstehen freie Zustände (Kreise); durch Photonen angeregte Elektronen ändern näherungsweise nicht ihren Impuls $\hbar \cdot k$ und können nur entsprechen der Pfeile ein Elektron aus dem d -Band in einen freien Zustand im s -Band anregen, dabei sind die wahrscheinlicheren Übergänge braun dargestellt und die unwahrscheinlicheren Übergänge grau

Weiterhin wird die durch die Pumplaserstrahlung hervorgerufene relative Reflektivitätsänderung der Goldoberfläche bei der Wellenlänge $\lambda_{\text{probe}} = 515$ nm der Probelerstrahlung in Abhängigkeit verschiedener Fluenzen der Pumplaserstrahlung untersucht, siehe Abbildung 5.12. Die Fluenz der Pumplaserstrahlung liegt dabei einmal unterhalb der Schwellfluenz für gentle Abtrag mit $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$, einmal mit $H_0 = 160 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 60 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ zwischen den Schwellfluenzen für gentle und strong Abtrag und mit $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ über der Schwellfluenz für strong Abtrag. Der betrachtete Zeitbereich ist $-20 \text{ ps} < t < 120 \text{ ps}$ mit einer Auflösung von $\Delta t = 1,5 \text{ ps}$. Bis zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ ps}$ verändert sich die relative Reflektivitätsänderung bei den Messungen aller drei Regime nicht. Zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ ps}$ findet eine abrupte negative relative Reflektivitätsänderung statt. Nach der Anregung unter der Schwellfluenz verringert sich die relative Reflektivitätsänderung innerhalb der ersten Pikosekunde um etwa 8 % und sinkt die darauffolgenden 60 ps weiter auf etwa -10 %. Ab $t > 60 \text{ ps}$ vergrößert sich die relative Reflektivitätsänderung langsam wieder und geht gegen 0 %, erreicht aber innerhalb des betrachteten Zeitbereichs nicht die ursprüngliche relative Reflektivität. Nach der Anregung mit Pumplaserstrahlung der Fluenz zwischen den Schwellfluenzen für gentle und strong Abtrag verringert sich die relative Reflektivitätsänderung innerhalb der ersten Pikosekunde um etwa 12 %, fällt

bis etwa $t = 12$ ps auf wenig unter -20 % der Ausgangsreflektivität und bleibt während des restlichen betrachteten Zeitintervalls in etwa konstant. Die Bestrahlung mit einer Fluenz $H > H_{\text{th, strong}}$ führt zu einer Reflektivitätsänderung von etwa -45 % innerhalb der ersten Pikosekunde, danach steigt die relative Reflektivitätsänderung innerhalb von 5 ps auf ein lokales Maximum von $\Delta R/R = -20$ % bei etwa 3 ps. Ab $t > 9$ ps sinkt die relative Reflektivitätsänderung kontinuierlich auf -80 %, eine Relaxation der relativen Reflektivitätsänderung findet innerhalb des betrachteten Zeitintervalls nicht statt.

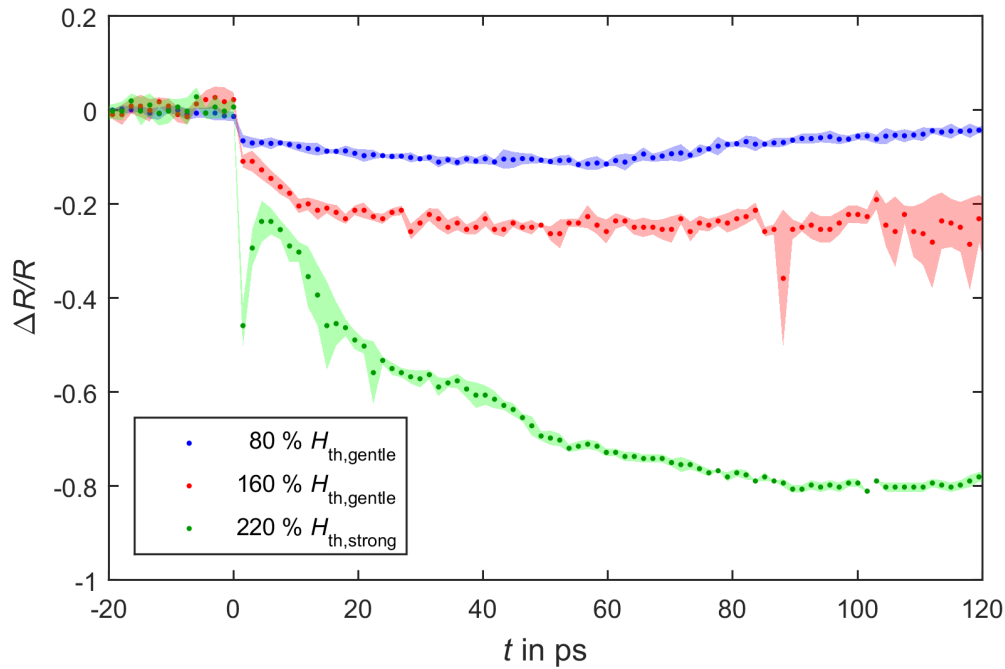


Abbildung 5.12: Die relative Reflektivitätsänderung einer unbeschichteten Goldoberfläche im Zeitbereich $-20 \text{ ps} < t < 120 \text{ ps}$ während der Bestrahlung mit Pumplaserstrahlung der Pulsdauer $\tau_{\text{H,Pump}} = 34 \text{ fs}$ und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$, $H_0 = 160 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 60 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ und $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$; die Wellenlänge der Probelerstrahlung beträgt $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$

Der abrupte Abfall der relativen Reflektivitätsänderung in Abbildung 5.12 in der ersten Pikosekunde nach $t = 0$ ps in allen drei Regimen ist, wie oben beschrieben, auf die Verbreiterung der Fermikante und der erhöhten Wahrscheinlichkeit einen Interbandübergang der Elektronen anzuregen zurückzuführen [15, 22]. Der Betrag der relativen Reflektivitätsänderung in der ersten Pikosekunde nach $t = 0$ ps steigt mit zunehmender Fluenz aufgrund des erhöhten Energieeintrags, der dadurch größeren Elektronentemperatur und einer resultierenden breiteren Fermikante. Da die anregende Pumplaserstrahlung eine Pulsdauer von $\tau_{\text{H,Pump}} = 34 \text{ fs}$ hat und die abrupte Änderung der relativen Reflektivitätsänderung in der ersten Pikosekunde nach $t = 0$ ps stattfindet, könnte der abrupte Abfall der relativen Reflektivitätsänderung bei allen drei Fluenzen mit dem 2-Temperatur-Modells erklärt werden, wobei Elektronen- und Phononensystem bei Anregung mit ultrakurz gepulster Strahlung getrennt betrachtet werden, siehe Kapitel 3.7.

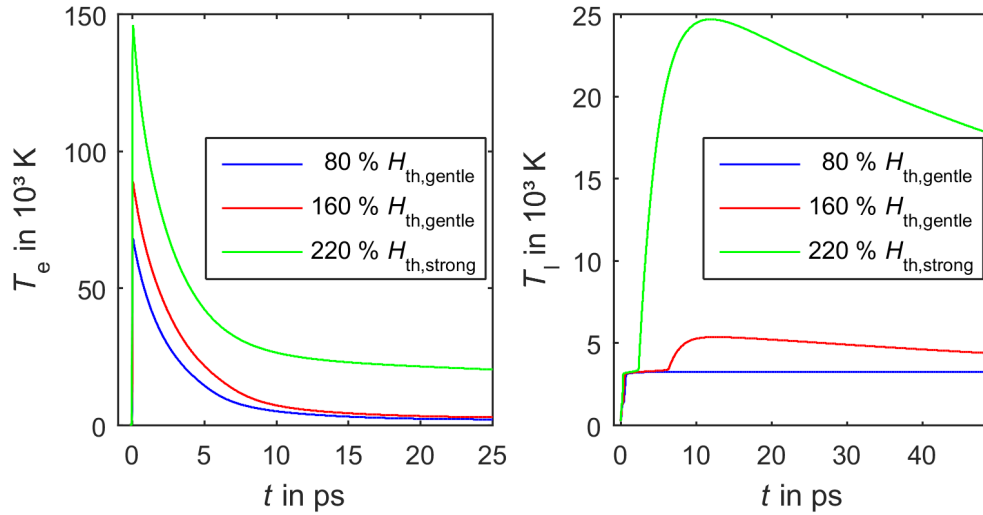


Abbildung 5.13: *Links*: simulierte Elektronentemperatur T_e von Gold in Abhängigkeit von der Zeit nach Anregung durch Pump laserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Pump}} = 800$ nm und der Pulsdauer $\tau = 34$ fs mit Fluenzen unterhalb des gentle Regimes, zwischen gentle und strong Regime und oberhalb des strong Regimes; *rechts*: simulierte Phonontemperatur T_l von Gold in Abhängigkeit von der Zeit nach Anregung durch Pump laserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Pump}} = 800$ nm und der Pulsdauer $\tau = 34$ fs mit Fluenzen unterhalb des gentle Regimes, zwischen gentle und strong Regime und oberhalb des strong Regimes [23]

Die Pump laserstrahlung koppelt zuerst innerhalb der Pulsdauer in das Elektronensystem ein, erhöht die Elektronentemperatur, siehe Abbildung 5.13, und die relative Reflektivitätsänderung der Probelaserstrahlung erreicht ein Minimum bei Bestrahlung der Probenoberfläche mit allen drei Fluenzen. Am deutlichsten ist dies bei einer Fluenz von $H_0 = 220 \% \cdot H_{th,strong} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ zu erkennen. Durch die geringen Fluenzen der Pumpstrahlung bei $H_{th,gentle} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ und $H_0 = 160 \% \cdot H_{th,gentle} = 60 \% \cdot H_{th,strong} = 2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ ist der Einfluss der Elektronentemperatur auf die relative Reflektivitätsänderung weniger sichtbar als bei Anregung der Goldoberfläche mit Pump laserstrahlung im strong Regime. Die Verläufe der Beträge von Elektronentemperatur und relativer Reflektivitätsänderung bei der Fluenz der Pump laserstrahlung $H_0 = 220 \% \cdot H_{th,strong} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ innerhalb der ersten 5 ps ähneln sich stark und sind in Abbildung 5.14 auf ihr jeweiliges Maximum normiert gegenübergestellt. Beide Verläufe erreichen innerhalb der ersten Pikosekunde ein Maximum. Der geringere Anstieg des Betrags der relativen Reflektivitätsänderung im Gegensatz zur Elektronentemperatur bis $t = 0$ ps ist auf die zu grobe zeitliche Auflösung Δt zurückzuführen. Für $t > 0$ ps sind beide Verläufe tendenziell gleich. Für weitere Untersuchungen der relativen Reflektivitätsänderung und der Elektronentemperatur im Zeitbereich $-1 \text{ ps} < t < 10 \text{ ps}$ ist eine größere zeitliche Auflösung Δt notwendig. Beide Verläufe in Abbildung 5.14 erreichen innerhalb der ersten Pikosekunde ein Maximum. Die Elektronen geben ab $t > \tau_{\text{Pump}}$ durch Wechselwirkung mit dem Phononensystem ihre Energie an die Phononen ab und die Elektronentemperatur sinkt, wodurch die relative Reflektivitätsänderung innerhalb von 5 ps steigt.

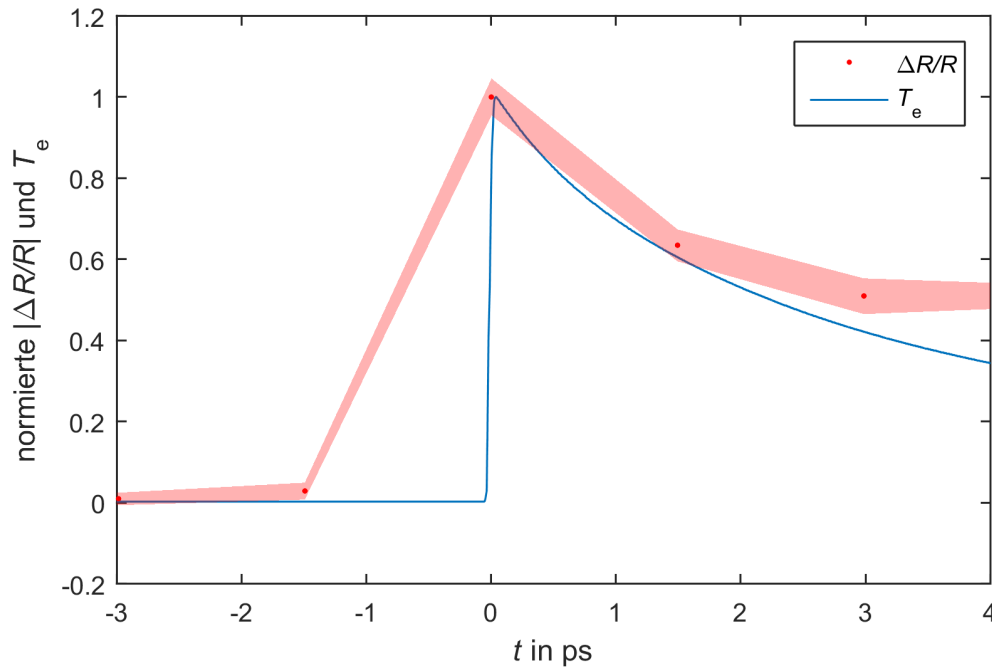


Abbildung 5.14: Auf das Maximum normierte gemessene relative Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ für $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ mit $\Delta t = 1,5 \text{ ps}$ und simulierte Elektronentemperatur T_e während Anregung der Goldoberfläche mit Pumplaserstrahlung mit der Fluenz $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ in Abhängigkeit von der Zeit im Zeitbereich $-3 \text{ ps} < t < 4 \text{ ps}$

Die sinkende relative Reflektivitätsänderung ab $t > 10 \text{ ps}$ im strong Regime und $t > 5 \text{ ps}$ im gentle Regime könnte durch das erwärmte Phononensystem und der dadurch entstehenden Schmelze und Ablation erklärt werden [20], da durch Phasenumwandlung und Dichteänderungen des Probenmaterials die optischen Eigenschaften verändert werden [41] und beim Abtragen zusätzlich die Struktur der Probenoberfläche modifiziert wird. Die Verläufe der Beträge der Phononentemperatur in Abbildung 5.13 und der relativen Reflektivitätsänderung bei $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 7 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ für $t > 10 \text{ ps}$ stimmen nicht überein. Diese Abweichung kann durch Schmelz- und Ablationsprozesse durch Pumplaserstrahlung im strong Regime hervorgerufen werden. Diese Änderungen sind in den Berechnungen mittels Zwei-Temperatur-Modell nicht enthalten, da nur die Temperaturverteilung des Elektronen- und Phononensystems berücksichtigt wird. Bei Anregung der Goldoberfläche durch Pumplaserstrahlung mit den Fluenzen von $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ und $H_0 = 160 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 60 \% \cdot H_{\text{th,strong}} = 2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ ähneln die Beträge der relativen Reflektivitätsänderungen in Abbildung 5.12 den Verläufen der simulierten Phononentemperatur in Abbildung 5.13 [16–19, 23]. Nach Anregung durch Pumplaserstrahlung ohne Abtrag erreichen relative Reflektivitätsänderung und Phononentemperatur innerhalb der ersten Pikosekunde einen Extremwert und bleiben bis $t = 50 \text{ ps}$ in etwa konstant. Nach Anregung durch Pumplaserstrahlung im gentle Regime steigen die Beträge von relativer Reflektivitätsänderung und Phononentemperatur innerhalb der ersten Pikosekunde abrupt an und erreichen bei $t = 10 \text{ ps}$ ihr Maximum.

Die relative Reflektivitätsänderung aufgrund der Bestrahlung mit ultrakurz gepulster Pumplaserstrahlung lässt sich näherungsweise mit dem Zwei-Temperatur-Modell beschreiben. Dabei entspricht der Verlauf innerhalb des Zeitbereichs $0 \text{ ps} < t < 5 \text{ ps}$ der relativen Reflektivitätsänderung durch Anregung im strong Regime in etwa dem Verlauf der simulierten Elektronentemperatur. Für $t > 5 \text{ ps}$ versagt die Beschreibung des strong Regimes mittels Zwei-Temperatur-Modell, da Schmelze und Ablation in diesem Modell nicht enthalten sind [3]. Die relative Reflektivitätsänderung nach Anregung durch Pumplaserstrahlung unterhalb des strong Regimes lässt sich ab $t > 5 \text{ ps}$ näherungsweise mit der simulierten Phononentemperatur beschreiben. Für exaktere Aussagen ist eine Messung der relativen Reflektivitätsänderung mit einer größeren zeitlichen Auflösung Δt und eine komplexere Modellierung notwendig.

5.4 Pump-Probe-Ellipsometrie

Die Änderung der Phasendifferenz Δ und des Amplitudenverhältnisses Ψ der an einer unbeschichteten Goldoberfläche reflektierten Probelerstrahlung aufgrund der Erwärmung durch Pumplaserstrahlung als Funktion der Zeit wird mittels Pump-Probe-Ellipsometrie bestimmt. Die Probelerstrahlung wird mit dem Polarisator komplett linear mit $\phi = 45^\circ$ relativ Einfallsebene auf die Probenoberfläche polarisiert. Die Verzögerungsstrecke der Pumplaserstrahlung variiert die optischen Weglängen von Pump- und Probelerstrahlung relativ zueinander, siehe Kapitel 4.1. Die reflektierte Probelerstrahlung wird durch das abbildende System auf dem Kamerachip abgebildet.

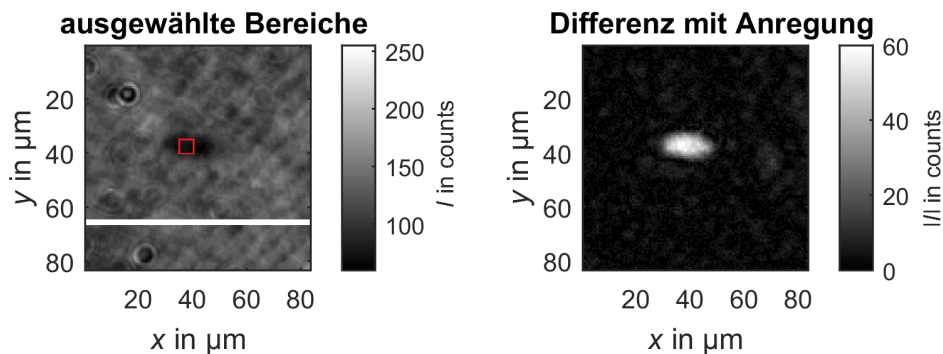


Abbildung 5.15: *Links*: Intensitätsverteilung der Probenoberfläche bei einem Analysatorwinkel von $\phi = 50^\circ$; der Bereich unterhalb der weißen Linie dient zur Bestimmung der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ der Goldoberfläche ohne Anregung durch Pumplaserstrahlung; der Bereich $35 \mu\text{m} < y < 40 \mu\text{m}$ und $35 \mu\text{m} < x < 45 \mu\text{m}$ (rot) wird mit Pumplaserstrahlung angeregt; *rechts*: Differenz der gemessenen Rohdaten mit Anregung und ohne Anregung durch Pumpstrahlung zur besseren Darstellung des Wechselwirkungsbereichs der Pumplaserstrahlung

Die von der Kamera detektierten Intensitätsverteilungen im Bereich unterhalb der weißen Linie in Abbildung 5.15 werden gemittelt und dienen zur Ermittlung von Δ und

Ψ der Goldoberfläche ohne Einwirkung der Pumplaserstrahlung. Die Intensität in Abhängigkeit vom Analysatorwinkel ϕ wird mit der Probelerstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$, der Pulsdauer $\tau = 180 \text{ fs}$ und den Einfallswinkeln θ von 56° , 60° , und 65° bestimmt. Die Goldoberfläche wird mit Pumplaserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$, der Pulsdauer $\tau = 34 \text{ fs}$ und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ angeregt. Der betrachtete Zeitbereich beträgt $-10 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ mit einer zeitlichen Auflösung von $\Delta t = 1,33 \text{ ps}$. Die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ werden, wie in Kapitel 3.2 beschrieben, aus den gemessenen Intensitätsverläufen ermittelt.

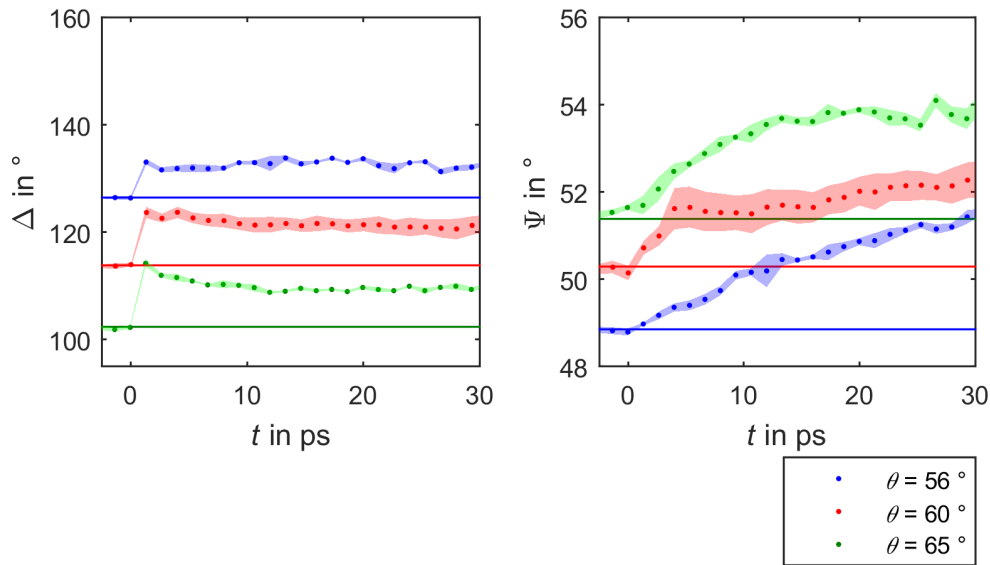


Abbildung 5.16: Gemessene Werte der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ über einen Zeitbereich von $-2 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ relativ zur anregenden Pumplaserstrahlung bei den Einfallswinkeln θ von 56° , 60° , und 65° , der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ der Pumplaserstrahlung; die durchgezogenen Linien stellen die gemessenen Werte für Δ und Ψ ohne Einwirkung der Pumplaserstrahlung dar

Die gemessenen Werte für Δ und Ψ in Abhängigkeit von der Zeit sind in Abbildung 5.16 dargestellt. Zur Zeit $t < 0 \text{ ps}$ bleiben Δ und Ψ für jeden Einfallswinkel θ konstant, wobei Δ mit zunehmendem Einfallswinkel θ abnimmt und Ψ mit größerem Einfallswinkel θ zunimmt, was dem typischen Verhalten eines Metalls entspricht, siehe Kapitel 3.5. Ab $t \geq 0 \text{ ps}$ steigt Δ innerhalb der ersten Pikosekunde abrupt an und bleibt danach für $\theta = 56^\circ$ und $\theta = 60^\circ$ näherungsweise konstant. Beim Einfallswinkel $\theta = 65^\circ$ fällt Δ nach dem abrupten Anstieg etwas ab und bleibt danach im restlichen betrachteten Zeitbereich konstant. Ψ steigt monoton ab $t \geq 0 \text{ ps}$ unter allen drei Einfallswinkeln θ im gesamten betrachteten Zeitbereich an. In erster Näherung werden die Brechzahl n und der Extinktionskoeffizient k direkt aus den gemessenen Werten für Δ und Ψ über ein Substratmodell, siehe Kapitel 3.3 und 3.5, ermittelt. Dabei wird keine, durch eine sich ausbreitende Schmelzfront entstehende, Schicht mit variabler Brechzahl n , Extinktionskoeffizient k und Schichtdicke d angenommen.

Die berechneten Werte für n und k in Abbildung 5.17 im Zeitbereich $t < 0$ ps ohne Anregung der Goldoberfläche durch Pumplaserstrahlung betragen im Mittel $n = 0,43 \pm 0,01$ und $k = 2,16 \pm 0,01$, welche mit den Werten für n und k in Kapitel 5.1 Tabelle 5.1 übereinstimmen.

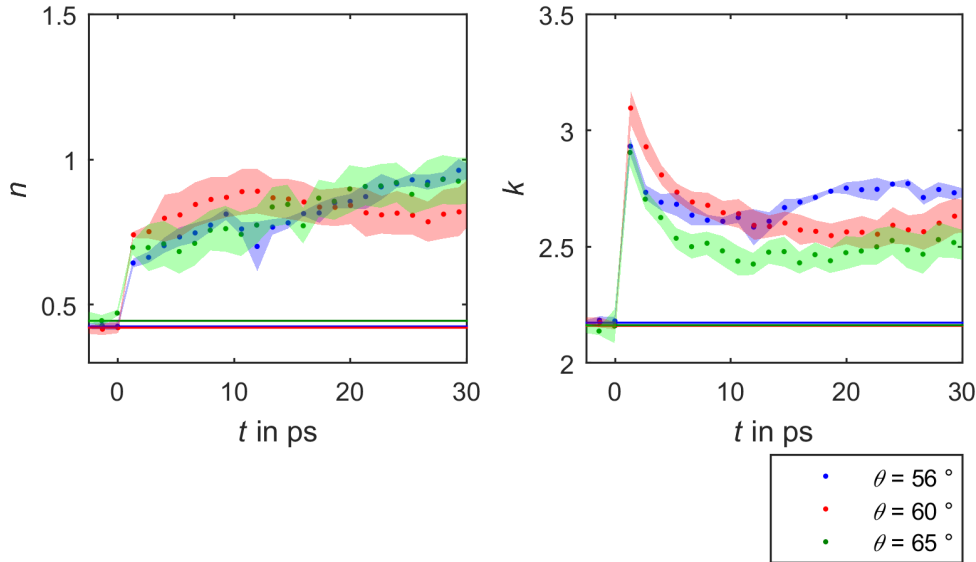


Abbildung 5.17: Berechnete Werte für n und k über einen Zeitbereich von $-2 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ relativ zur anregenden Pumplaserstrahlung bei den Einfallswinkeln θ von 56° , 60° , und 65° , der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ der Probelerstrahlung und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ der Pumplaserstrahlung; die durchgezogenen Linien stellen die Werte für n und k ohne Einwirkung der Pumplaserstrahlung dar

Die zeitlich abhängigen Verläufe von n und k sind für alle drei Einfallswinkeln θ annähernd gleich. Bei $t = 0 \text{ ps}$ steigen n und k abrupt innerhalb der ersten Pikosekunde an. Der Brechungsindex n steigt, für alle drei Kurven gemittelt, abrupt von $0,4$ auf etwa $0,6$ an und vergrößert sich danach, ähnlich dem Verlauf von Ψ ab $t > 1 \text{ ps}$, im restlichen betrachteten Zeitbereich kontinuierlich. Der Extinktionskoeffizient k steigt ebenfalls abrupt von $2,2$ auf etwa $2,9$ an, fällt ab $t > 1 \text{ ps}$ bis etwa $t = 10 \text{ ps}$ ab und bleibt danach den restlichen betrachteten Zeitbereich über in etwa konstant bei $2,6$, wobei k unter dem Einfallswinkel $\theta = 56^\circ$ wieder etwas ansteigt. Die zeitlichen Verläufe der relativen Reflektivitätsänderung im Kapitel 5.3 zeigen einen ähnlich starken Anstieg, der mit der simulierten Elektronentemperatur korreliert, wodurch auch für n und k eine direkte Abhängigkeit von der Elektronentemperatur zu vermuten ist. Der abrupte Anstieg von n und k könnte somit mit der Verbreiterung der Fermikante infolge der Bestrahlung und Erwärmung der Goldoberfläche durch die Pumplaserstrahlung erklärt werden. Dadurch werden, wie in Kapitel 3.6 und 5.3 beschrieben, oberhalb der Fermikante freie Energiezustände besetzt und unterhalb der Fermienergie besetzte Zustände frei und der Absorptionskoeffizient $\alpha \sim k$ für λ_{Probe} steigt, wodurch k zunimmt, siehe Gleichung 3.32. Andere Literaturen zeigen eine ähnliche abrupte Änderung des komplexen Brechungsindex [11].

Die zeitlichen Verläufe von n und k sollten gemäß dem Substratmodell unabhängig vom Einfallswinkel θ der Probelerstrahlung gleich sein. Mögliche Ursachen für die Unterschiede in n und k in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ für Zeiten $t > 0$ ps könnten eine Ausdehnung bzw. Wölbung der Probenoberfläche, eine Dichteänderung, eine Änderung der Elektronenkonzentration oder eine Änderung bzw. entstehende Anisotropie der effektiven optischen Eindringtiefe in folge der Erwärmung der Probenoberfläche sein. Das abweichende Verhalten von k beim Einfallswinkel $\theta = 56^\circ$ ab $t > 10$ ps kann nicht erklärt werden.

Zum Vergleich der Messungen der Pump-Probe-Ellipsometrie mit den Ergebnissen der Pump-Probe-Reflektometrie der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ der Pumplaserstrahlung aus Kapitel 5.3 werden die Werte für n und k über die Fresnel-Gleichungen 3.14 in die parallele Komponente der Reflektivität umgerechnet. Die berechneten und gemessenen relativen Reflektivitätsänderungen in Abbildung 5.18 sinken ab $t > 0$ ps.

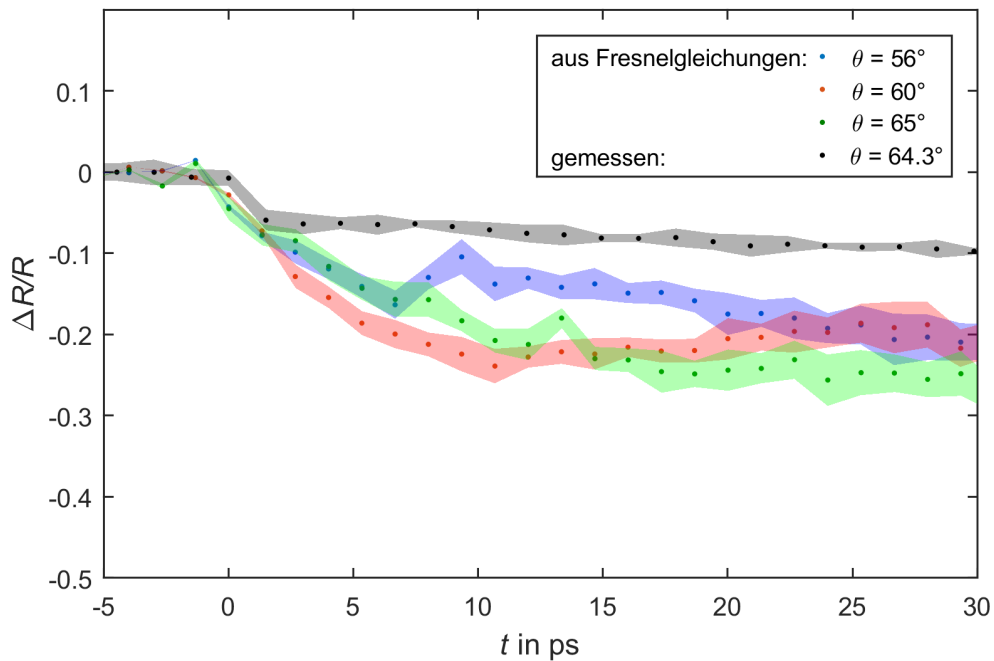


Abbildung 5.18: Vergleich der gemessenen relativen Reflektivitätsänderung nach Bestrahlung der Probenoberfläche mit der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ der Pumplaserstrahlung und den aus n und k der Pump-Probe-Ellipsometrie berechneten relativen Reflektivitätsänderungen bei der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515$ nm der Probelerstrahlung

Die gemessene relative Reflektivitätsänderung erreicht bei etwa $t = 1,5$ ps ein Minimum und bleibt den restlichen betrachteten Zeitbereich näherungsweise konstant bei $\Delta R/R = -10 \%$. Die berechneten relativen Reflektivitätsänderungen sinken bis etwa $t = 8$ ps und bleiben dann im Mittel näherungsweise konstant bei $\Delta R/R = -20 \%$. Das einfache Substratmodell zur Berechnung von n und k aus den gemessenen Ellipsometrieparametern Δ und Ψ beschreibt den physikalischen Vorgang somit nicht, da die mit-

tels Substratmodell ermittelten relativen Reflektivitätsänderungen von den gemessenen relativen Reflektivitätsänderungen abweichen. Deswegen muss das Substratmodell zu einem komplexeren Modell erweitert werden, wobei der erste Ansatz ein Einschichtmodell darstellt, um weitere Vorgänge, wie Ausbildung und Ausbreitung einer Schmelze, während der Erwärmung der Probenoberfläche zu berücksichtigen.

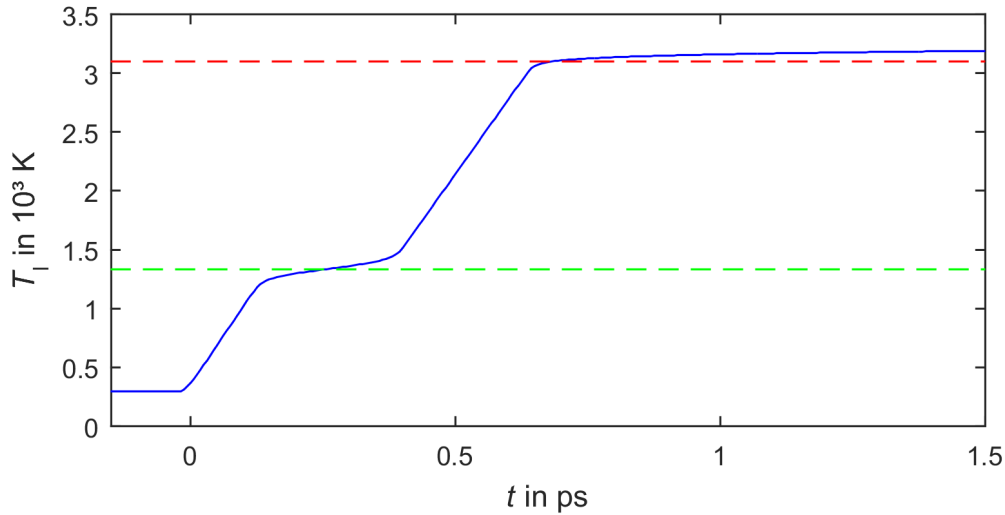


Abbildung 5.19: Simulierte Phononentemperatur T_l von Gold in Abhängigkeit von der Zeit nach Anregung durch Pumplaserstrahlung der Pulsdauer $\tau = 34$ fs mit der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$; die Schmelztemperatur von Gold von 1334 K (grün) ist nach $t = 140$ fs erreicht und nach $t = 400$ fs überschritten; die Verdampfungstemperatur von Gold von 3100 K (rot) ist nach 600 fs erreicht, wird aber nicht überschritten [23]

In Abbildung 5.19 ist zu erkennen, dass bereits innerhalb der ersten halben Pikosekunde die Schmelztemperatur der Goldoberfläche nach Anregung durch Pumplaserstrahlung mit der Pulsdauer $\tau = 34$ fs und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ überschritten wird [10, 23].

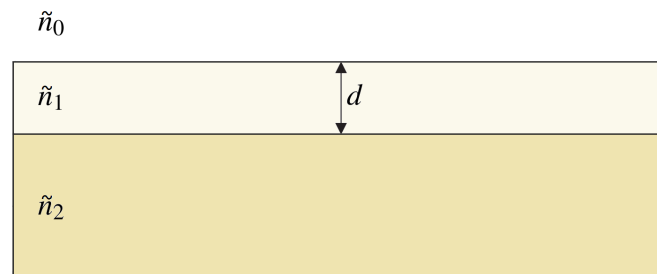


Abbildung 5.20: Einschichtmodell aus Umgebungsmedium mit \tilde{n}_0 , einer Schmelzfront mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 und der Schichtdicke d und einem Substrat mit \tilde{n}_2 [3]

Deswegen setzt sich das verwendete Einschichtmodell in Abbildung 5.20 aus dem Gold-

substrat mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_2 , einer entstehenden Schmelze mit dem komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 und der Schichtdicke d und dem Umgebungsmedium Luft mit $\tilde{n}_0 = 1$ zusammen [3]. Der Dispersionsverlauf des Substrats ist durch die in Abbildung 5.17 für $t < 0$ ps ermittelten und als konstant angenommenen Werte von $n = 0,4$ und $k = 2,2$ bestimmt. Der Dispersionsverlauf von n und k der Schmelzfront wird durch die variablen Parameter n , k und d beschrieben und an die Messwerte der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ aus Abbildung 5.16 approximiert. Die an die Messwerte approximierten Dispersionsverläufe sind im Anhang A in Abbildung A.3 dargestellt.

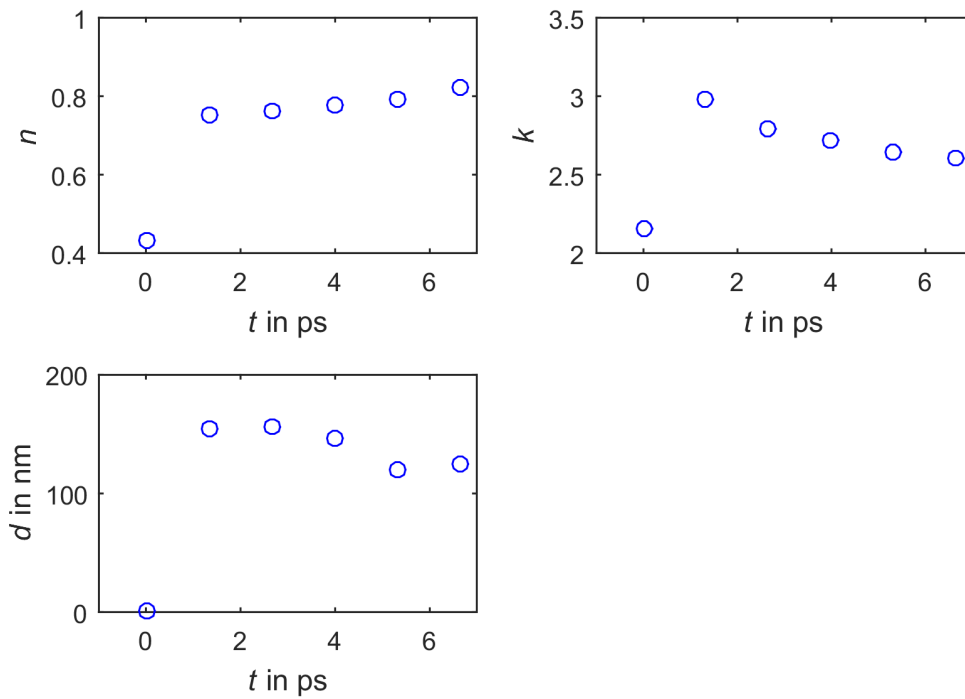


Abbildung 5.21: Berechnete Brechzahl n (o.l.), Extinktionskoeffizient k (o.r.) und Schichtdicke d (u.l.) der Schmelzfront auf der Goldoberfläche nach Anregung durch Pumplaserstrahlung mit der Pulsdauer $\tau_{\text{H,Pump}} = 34$ fs und der Fluenz von $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$

Die mit dem erstellten Dispersionsmodells berechneten Werte für n , k und d der Schmelze auf der Goldoberfläche sind in Abbildung 5.21 im Zeitintervall $-1 \text{ ps} < t < 7 \text{ ps}$ dargestellt. Die dazugehörigen Standardabweichungen sind im Anhang A in Abbildung A.4 dargestellt. Für $t < 0$ ps ist keine Schmelze vorhanden, die Schichtdicke beträgt $d = 0$. Innerhalb des ersten Zeitschritts Δt nach $t < 0$ ps steigt die Schmelzschichtdicke auf ein Maximum von $d = 150$ nm. Die berechnete Schmelzschichtdicke d ist somit viel größer als die optische Eindringtiefe der Probepulserstrahlung in Gold mit $z_e \approx 14$ nm. Möglicherweise haben sich die optischen Eigenschaften eines Materials während der Anregung mit ultrakurz gepulster Strahlung stark geändert [41, 43]. Die Schichtdicke nimmt innerhalb von $\Delta t = 1,33$ ps um $\Delta d = 150$ nm zu, was einer Ausbreitungsgeschwindigkeit von $v_{\text{Schmelze}} \approx 110 \frac{\text{km}}{\text{s}}$ entspricht. Eine Schmelzfront kann sich aber maximal mit Schallgeschwindigkeit ausbreiten [42], welche bei Gold $v_{\text{Schall}} = 3,2 \frac{\text{km}}{\text{s}}$ beträgt.

Das angewendete Einschichtmodell zur Beschreibung der Änderung von Brechzahl n und Extinktionskoeffizient k und der Ausbreitung der Schmelzfront stellt aufgrund der Einschränkungen durch die optische Eindringtiefe der Probelaserstrahlung, der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Schmelzfront und der großen Standardabweichung in Abbildung A.4 die tatsächlichen physikalischen Prozesse nur bedingt dar.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Ein automatisierter experimenteller Pump-Probe-Aufbau in Kombination mit einem Reflektometer und Ellipsometer zur zeit- und orts aufgelösten Bestimmung der Materialeigenschaften Reflektivität R , Brechungsindex n , Extinktionskoeffizient k und Schichtdicke d wurde erfolgreich konstruiert, aufgebaut und kalibriert. Dabei wird Pump-laserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$ und der Pulsdauer $\tau_{\text{H,Pump}} = 34 \text{ fs}$ und Prob-laserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und der Pulsdauer $\tau_{\text{H,Probe}} = 180 \text{ fs}$ verwendet. Pump- und Prob-laserstrahlung können zeitlich relativ zueinander mit einer Verzögerungsstrecke verschoben werden. Der Zeitpunkt t der ersten detektierten Materialantwort nach Anregung einer Materialoberfläche durch Pump-laserstrahlung wird als zeitlicher Nullpunkt $t = 0 \text{ ps}$ definiert. Das Ellipsometer basiert auf der Methode des rotierenden Analysators und misst die durch Reflexion an einem Material hervorgerufene Änderung der Phasendifferenz Δ und des Amplitudenverhältnisses Ψ von senkrechter und paralleler Komponente der elektrischen Feldstärke der Prob-laserstrahlung.

Über die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ kann der komplexe Brechungsindex $\tilde{n} = n + ik$ eines Substrats über Gleichung 3.19, 3.20 und 3.21 ermittelt werden. Zur Validierung des Pump-Probe-Ellipsometers werden die ermittelten Ergebnisse für Brechzahl n und Extinktionskoeffizient k des Dielektrikums PMMA, des Halbleiters Silizium und des Metalls Gold mit den Messwerten eines kommerziellen Ellipsometers verglichen, wobei die Abweichung weniger als 10 % beträgt. Die Messung der Ellipsometrieparameter Δ und Ψ in Abhängigkeit verschiedener Einfallswinkel θ und Wellenlängen λ_{Probe} der Prob-laserstrahlung ermöglicht die Bestimmung der Schichtdicke einer dünnen Schicht auf dem Substrat. Die Abweichung der Messergebnisse der Schichtdicken d einer SiO_2 -Schicht auf Gold, Silber und Silizium des Pump-Probe-Ellipsometers von den Messergebnissen des kommerziellen Ellipsometers ist kleiner 10 %.

Zeitaufgelöste Pump-Probe-Reflektometrie und zeitaufgelöste Pump-Probe-Ellipsometrie werden an einer Goldprobe (unbeschichteter Goldspiegel mit $R_a < 3 \text{ nm}$) durchgeführt. Der Strahldurchmesser der Pump-laserstrahlung im Fokus auf der Goldoberfläche beträgt $29,1 \text{ }\mu\text{m}$. Die Schwellfluenzen der Goldprobe werden zu $H_{\text{th, gentle}} = 1,22 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ und $H_{\text{th, strong}} = 3,15 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ bestimmt. Die relative Reflektivitätsänderung wird bei der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th, gentle}}$ und den Wellenlängen $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Probe}} = 480 \text{ nm}$ in einem Zeitintervall von $-20 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ gemessen. Die relative Reflektivitätsänderung nach Bestrahlung der Goldoberfläche mit Pump-laserstrahlung steigt für die Prob-laserstrahlung der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 480 \text{ nm}$ und sinkt bei $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$. Dies wird mit der Verbreiterung der Fermikante bei erhöhter Elektronentemperatur T_e erklärt, wodurch vorher mögliche Interbandübergänge, angeregt durch Photonen der Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 480 \text{ nm}$, unwahrscheinlicher werden und die Absorption sinkt. Unterhalb der Fermikante ist die Wahrscheinlichkeit für besetzte Energieniveaus gesun-

ken und die Wahrscheinlichkeit für Elektroneninterbandübergänge durch Photonen mit $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ und somit der Absorption dieser Photonen steigt. Die Bestimmung der relativen Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit von der Fluenz der Pumplaserstrahlung mit $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$, $H_0 = 160 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$ und $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}}$ ergibt in allen drei Regimen für die Wellenlänge λ_{Probe} der Probelerstrahlung einen abrupten Abfall der Reflektivität innerhalb der ersten Pikosekunde nach $t = 0 \text{ ps}$. Der Betrag dieser abrupten Reflektivitätsänderung folgt qualitativ dem Verlauf der simulierten Elektronentemperatur $T_e(t)$. Die relative Reflektivitätsänderung ab $t > 10 \text{ ps}$ bei den Fluenzen $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$ und $H_0 = 160 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$ ähnelt in etwa der zeitabhängigen Phononentemperatur $T_l(t)$. Die Verläufe der Beträge von Phononentemperatur und relativer Reflektivitätsänderung bei der Fluenz $H_0 = 220 \% \cdot H_{\text{th,strong}}$ ähneln sich nicht, was auf die Ablation der Goldoberfläche zurückzuführen ist.

Die Werte für die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ einer Goldoberfläche werden mittels Pump-Probe-Ellipsometrie bei der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}}$ der Pumplaserstrahlung und den Einfallswinkeln θ von 56° , 60° und 65° der Probelerstrahlung im Zeitbereich $-10 \text{ ps} < t < 30 \text{ ps}$ mit $\Delta t = 1, 3 \text{ ps}$ gemessen. Δ weist dabei, ähnlich der relativen Reflektivitätsänderung, einen abrupten Anstieg innerhalb einer Pikosekunde bei $t = 0 \text{ ps}$ auf und Ψ steigt langsam innerhalb des gesamten betrachteten Zeitbereichs an. In erster Näherung werden aus den ermittelten Ellipsometrieparametern Δ und Ψ direkt die Brechzahl n und der Extinktionskoeffizient k der durch Pumplaserstrahlung angeregten Goldoberfläche bestimmt. n und k weisen einen abrupten Anstieg bei $t = 0 \text{ ps}$ innerhalb einer Pikosekunde auf. Dieser abrupte Anstieg könnte durch die Ausbildung einer Schmelze auf der Goldoberfläche entstehen [10]. Der Vergleich mit der Simulation der Phononentemperatur zeigt, dass die Schmelze bereits innerhalb der ersten halben Pikosekunde auftritt und unterstützt damit diese Annahme. Zur Beschreibung der Ausbreitung der Schmelzfront wird in erster Annahme ein Einschichtmodell verwendet. Anhand der gemessenen Werte für Δ und Ψ wird mittels dem Dispersionsverlauf Gold als Substrat, einem variablem n , k und d als dünne Schicht und Luft als Umgebungsmedium die Schichtdicke der Schmelze in Abhängigkeit der Zeit berechnet. Dieser Ansatz beschreibt die Änderung der Brechzahl n und des Extinktionskoeffizienten k und die Ausbreitung der Schmelze wahrscheinlich nicht exakt, da die berechnete optische Eindringtiefe der Probelerstrahlung und Ausbreitungsgeschwindigkeit der Schmelzfront nicht mit den ermittelten Ergebnissen übereinstimmen. Zudem ist die Standardabweichung der ermittelten Werte für n , k und d um ein Vielfaches größer als die eigentlichen Messwerte.

In zukünftigen Projekten können die Messprozesse noch hinsichtlich ihrer Genauigkeit und dem benötigten Zeitaufwand optimiert werden.

Durch einen Umbau der Anordnung des Ellipsometers mit rotierendem Analysator zur Nullellipsometrie kann abgeschätzt werden, ob die Messungen der Nullellipsometrie weniger fehleranfällig sind.

Durch einen Umstieg von Matlab auf C bzw. C++ oder Python als Ansteuerungsschnittstelle könnte die evtl. größere Messdauer der Nullellipsometrie kompensiert werden.

Der Aufbau eines Prismen- oder Gitterkompressors kann die, durch den Polarisator gechirpte, Pulsdauer der Probelerstrahlung verringern, wodurch die zeitliche Auflösung um bis zu fünf mal kürzer wird. Die zeitliche Auflösung der Messung von Δ und Ψ muss mittels Kompressor verbessert werden, damit der Verlauf der Ausbreitung der Schmelze auf der Materialoberfläche innerhalb der ersten halben Pikosekunde dargestellt werden kann. Dadurch können die abrupten Anstiege der relativen Reflektivitätsänderung und n und k bei $t = 0$ ps genauer untersucht und besser mit den simulierten Werten der Elektronen- und Phononentemperatur verglichen werden. Ein Kompressor im Strahlengang der Pumplaserstrahlung ermöglicht Untersuchungen der Schwellfluenzen, Reflektivitätsänderungen und Änderungen von n und k in Abhängigkeit von der Pulsdauer der anregenden Pumplaserstrahlung, damit der Zusammenhang zwischen relativer Reflektivitätsänderung und Elektronentemperatur innerhalb der Pulsdauer der Pumplaserstrahlung genauer untersucht werden kann.

Eine spektroskopische Untersuchung der relativen Reflektivitätsänderung im Wellenlängenbereich von $\lambda_{\text{Probe}} = \lambda_{\text{ITT}} \pm 200$ nm liefert genauere Informationen der realen Aufenthaltswahrscheinlichkeitsverteilung der Elektronen in der Nähe der Fermikante und kann zur Validierung des zur Simulation der Laserstrahl-Materie-Wechselwirkung verwendeten Modells dienen.

Durch Untersuchungen von Proben gleichen Materials mit unterschiedlichen Rauigkeiten, Korngrenzen, Herstellungsprozessen etc. sind Rückschlüsse dieser Eigenschaften auf die Ergebnisse der Ellipsometrie bzw. Reflektometrie möglich. Insbesondere kann dadurch der Einfluss von Streueffekten detailliert untersucht und analysiert werden. Ein Einfallswinkel θ der Probelerstrahlung von 90° ermöglicht zeitaufgelöste Schattenfotografie der Ablationsprozesse und die Abbildung eines entstehenden Plasmas, sowie auftretender Stoßwellen in Luft.

Literaturverzeichnis

- [1] K. Sugioka, Ultrafast Laser Processing: From Micro- to Nanoscale: From Micro- to Nanoscale (CRC Press, Hoboken, 2013)
- [2] A. Horn, Ultra-fast material metrology (Wiley-VCH, Weinheim, 2009)
- [3] H. Fujiwara, Spectroscopic ellipsometry: Principles and applications: Principles and applications (Wiley, Chichester, 2009)
- [4] H.G. Tompkins (ed), Handbook of ellipsometry (Andrew, Norwich, NY, 2010)
- [5] C. Cobet, Die dielektrische Funktion verschiedener SiC-Modifikationen im Spektralbereich von 1,5 - 30 eV (Technische Universität Berlin, Berlin, 1999)
- [6] D. Meschede, Optik, Licht und Laser (Vieweg+Teubner Verlag / GWV Fachverlage GmbH Wiesbaden, Wiesbaden, 2008)
- [7] S. Voß, Ellipsometrische Charakterisierung dünner Schichten auf Siliziumsubstraten (Universität Osnabrück, Osnabrück, 2012)
- [8] T. Dessauvagie, Untersuchung dünner Si_3N_4 -Schichten mit Ellipsometrie und RBS (Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, Bonn, 1997)
- [9] H. Arwin, Journal of Colloid and Interface Science 156, 377 (1993)
- [10] B. Neuenschwander, Institute for Applied Laser, Photonics and Surface Technologies ALPS, Bern University of Applied Sciences, Pestalozzistrasse 20, Burgdorf, Switzerland, M. Schmid, S. Zehnder, P. Schwaller, M. Held, U. Hunziker, J. Zürcher, Measuring Optical Properties On Rough And Liquid Metal Surfaces (2013)
- [11] S. Rapp, M. Kaiser, M. Schmidt, H.P. Huber, Optics express 24, 17572 (2016)
- [12] J. Winter, S. Rapp, M. Schmidt, H.P. Huber, Applied Surface Science (2017)
- [13] H. Yoneda, H. Morikami, K.-i. Ueda, R.M. More, Physical review letters 91, 75004 (2003)
- [14] N. Mamedov, K. Wakita, Y. Shim, K. Abe, N. Ogushi, Thin Solid Films 517, 1434 (2008)

- [15] S.-S. Wellershof, Untersuchungen zur Energierelaxationsdynamik in Metallen nach Anregung mit ultrakurzen Laserpulsen (Freie Universität Berlin, Berlin, 2000)
- [16] S.I. Anisimov, B. Rethfeld, in , ed. by V.I. Konov, M.N. Libenson (SPIE, 1997), p. 192
- [17] J.K. Chen, D.Y. Tzou, J.E. Beraun, International Journal of Heat and Mass Transfer 49, 307 (2006)
- [18] Z. Lin, L.V. Zhigilei, V. Celli, Phys. Rev. B 77 (2008)
- [19] Y. Ren, J.K. Chen, Y. Zhang, J. Huang, Appl. Phys. Lett. 98, 191105 (2011)
- [20] J. Wei, Z. Sun, F. Zhang, W. Xu, Y. Wang, F. Zhou, F. Gan, Chemical Physics Letters 392, 415 (2004)
- [21] S.-S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. GÜdde, E. Matthias, Appl Phys A 69, S99-S107 (1999)
- [22] C. Kittel, Einführung in die Festkörperphysik (Oldenbourg, München, 2002)
- [23] M. Frank, Untersuchungen der Ablationsdynamik dünner Metallschichten durch ultrakurz gepulste Laserstrahlung (Hochschule Mittweida, Mittweida, 2017)
- [24] J.M. Liu, Opt. Lett. 7, 196 (1982)
- [25] DIN EN ISO 11146-1, Laser und LAseranlagen - Prüfverfahren für Laserstrahlmessungen, Divergenzwinkel und Beugungsmaßzahlen - Teil 1: Stigmatische und einfach astigmatische Strahlen (2005)
- [26] M. Olbrich, Scientific Reports, Journal of the University of Applied Sciences Mittweida S175-S178 (2015)
- [27] F.L. Pedrotti, L.S. Pedrotti, W. Bausch, H. Schmidt, Optik für Ingenieure: Grundlagen: Grundlagen (Springer, Berlin, 2008)
- [28] R. Trebino, Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses (Springer, New York, 2000)
- [29] I. Zeylikovich, H.I. Sztul, V. Kartzaev, T. Le, R.R. Alfano, Opt. Lett. 32, 2025 (2007)
- [30] I. Bodurov, I. Vlaeva, G. Exner, Y. Uzunova, S. Russev, B. Pilicheva, A. Viraneva,

- T. Yovcheva, T. Grancharova, S. Sotirov, M. Marudova, J. Phys.: Conf. Ser. 682, 12026 (2016)
- [31] P.B. Johnson, R.W. Christy, Phys. Rev. B 6, 4370 (1972)
- [32] A.D. Rakić, A.B. Djurišić, J.M. Elazar, M.L. Majewski, Appl. Opt. 37, 5271 (1998)
- [33] S. Babar, J.H. Weaver, Appl. Opt. 54, 477 (2015)
- [34] G. Beadie, M. Brindza, R.A. Flynn, A. Rosenberg, J.S. Shirk, Appl. Opt. 54, F139-43 (2015)
- [35] D.E. Aspnes, A.A. Studna, Phys. Rev. B 27, 985 (1983)
- [36] I.H. Malitson, J. Opt. Soc. Am. 55, 1205 (1965)
- [37] C. Cheng, X. Xu, Phys. Rev. B 72 (2005)
- [38] T. Weis, Modellstudien zum Ladungsträgertransport über Korngrenzen in photovoltaischen Materialien
- [39] V.G. Yarzhemsky, E.N. Murav'ev, M.A. Kazaryan, Y.A. Dyakov, Inorg Mater 48, 1075 (2012)
- [40] R. Trebino, Frequency-resolved optical gating: The measurement of ultrashort laser pulses: The measurement of ultrashort laser pulses (Kluwer Academic Publishers, Boston, Dordrecht, London, 2002)
- [41] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde, A. Oparin, J. Meyer-ter-Vehn, S.I. Anisimov, Physical review letters 81, 224 (1998)
- [42] I. Mingareev, Ultrafast dynamics of melting and ablation at large laser intensities (Cuvillier, Göttingen, 2009)
- [43] K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde, Applied Surface Science 127-129, 755 (1998)
- [44] C.-K. Sun, F. Vallée, L. Acioli, E.P. Ippen, J.G. Fujimoto, Phys. Rev. B 48, 12365 (1993)

Anhang A: Modelle

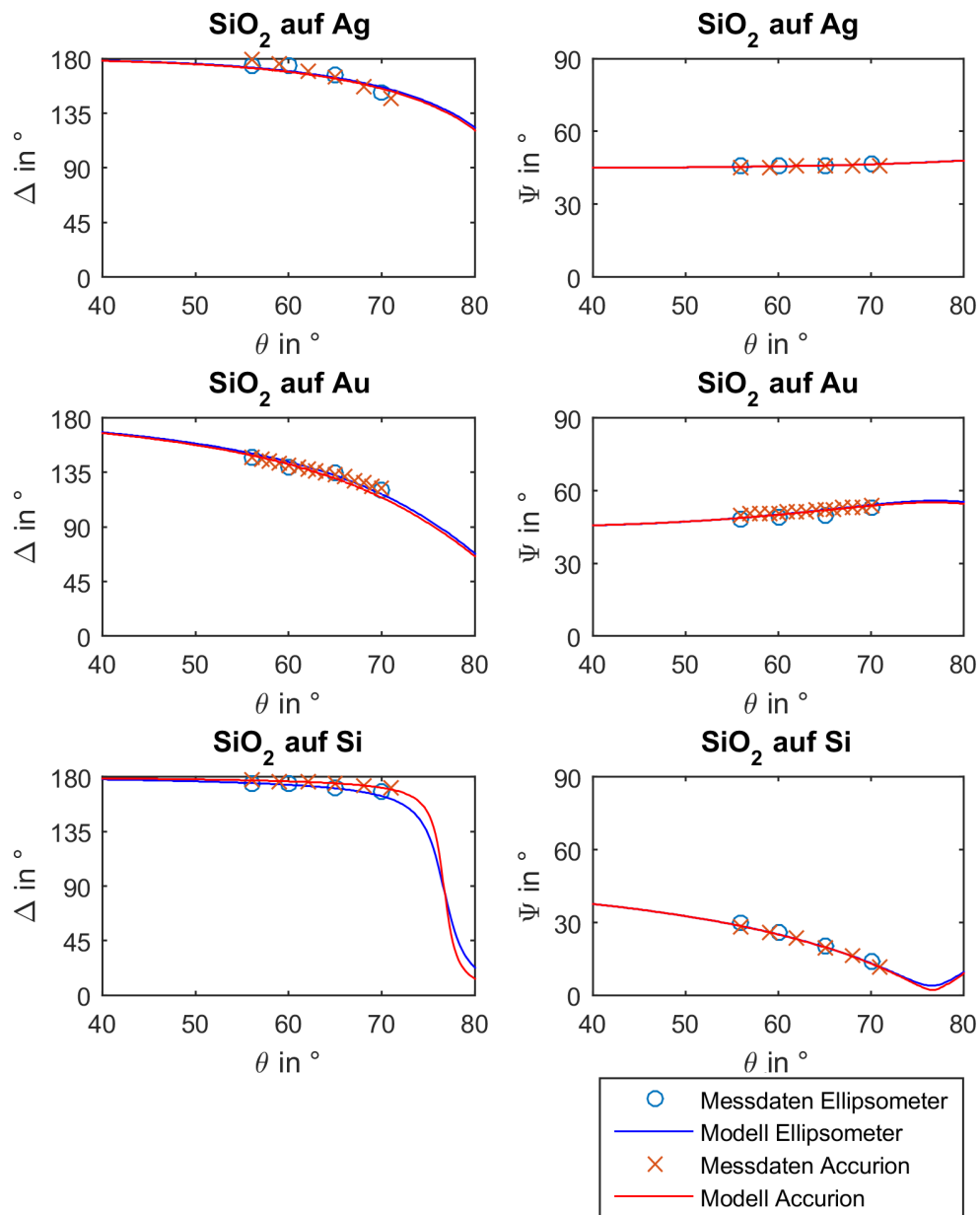


Abbildung A.1: Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe und kommerziellem Ellipsometer bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 515 \text{ nm}$ für eine SiO_2 -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat

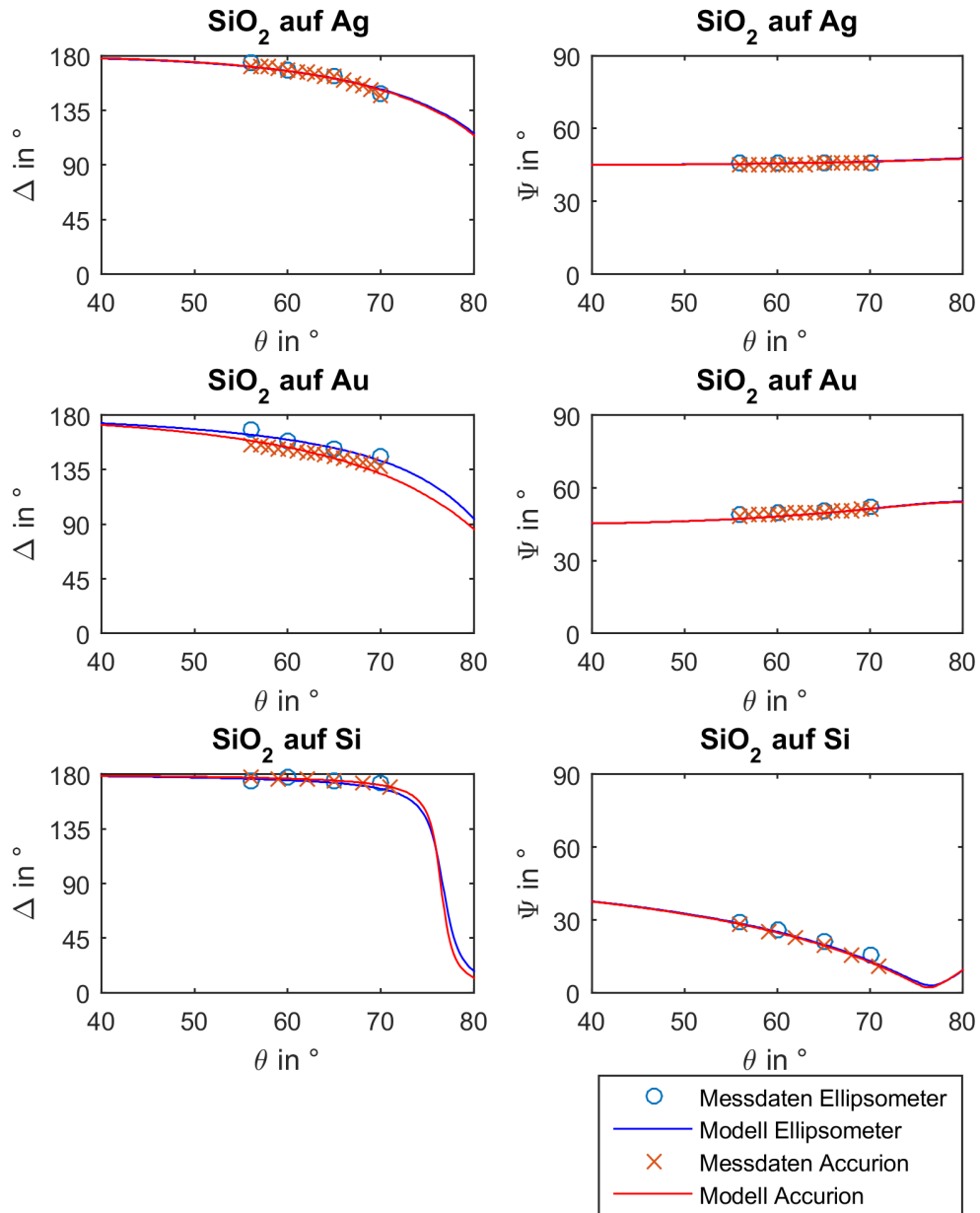


Abbildung A.2: Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ von Pump-Probe und kommerziellem Ellipsometer bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ für eine SiO_2 -Schicht auf einem Silber-, Gold- und Siliziumsubstrat

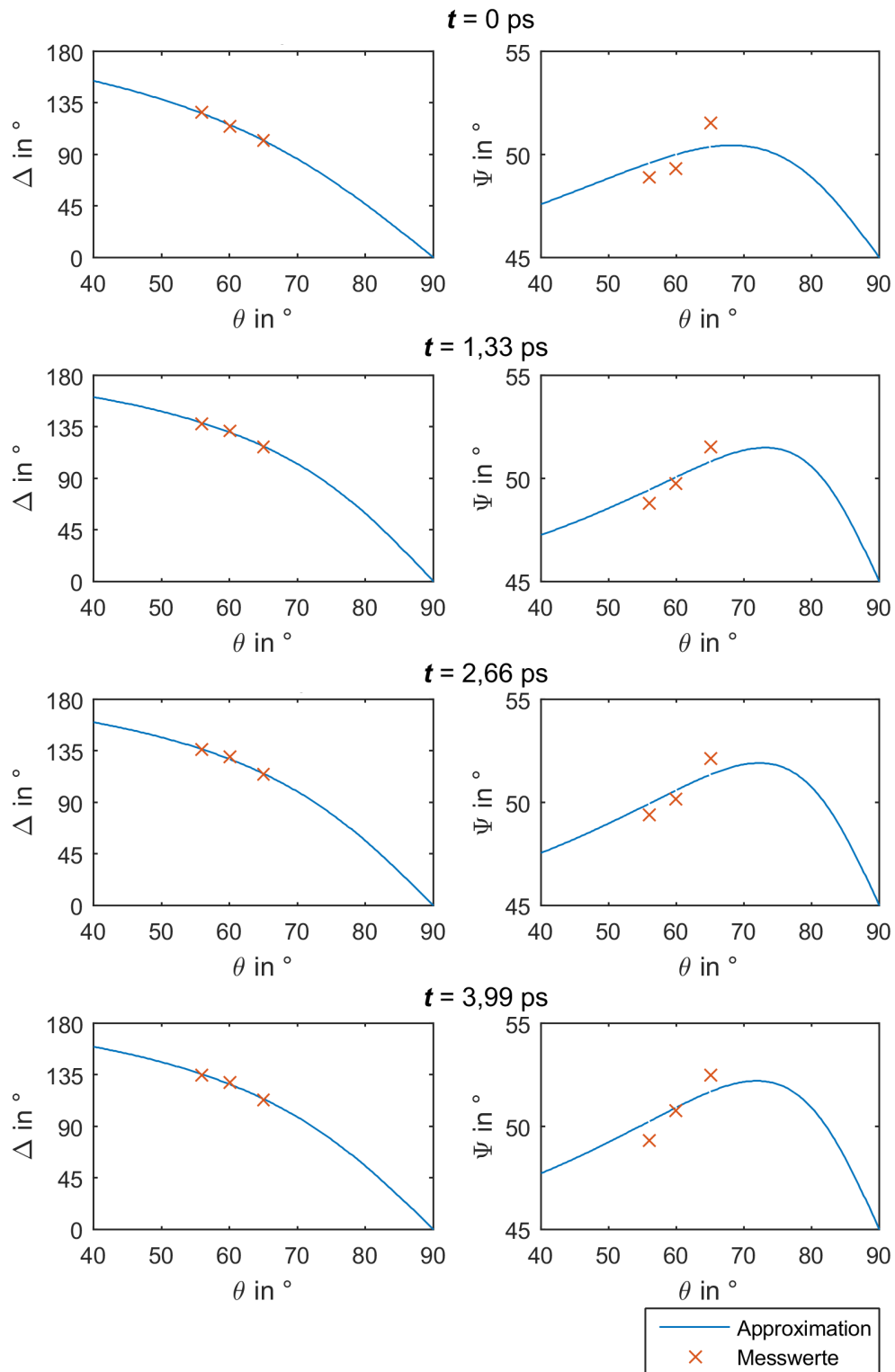


Abbildung A.3: Messdaten und approximierte Dispersionsverläufe von Δ und Ψ von Gold in Abhängigkeit vom Einfallswinkel θ zu unterschiedlichen Zeiten t bei Anregung mit Pumplaserstrahlung der Fluenz $H_{\text{Pump}} = 80 \% \cdot H_{\text{th,gentle}} = 1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$

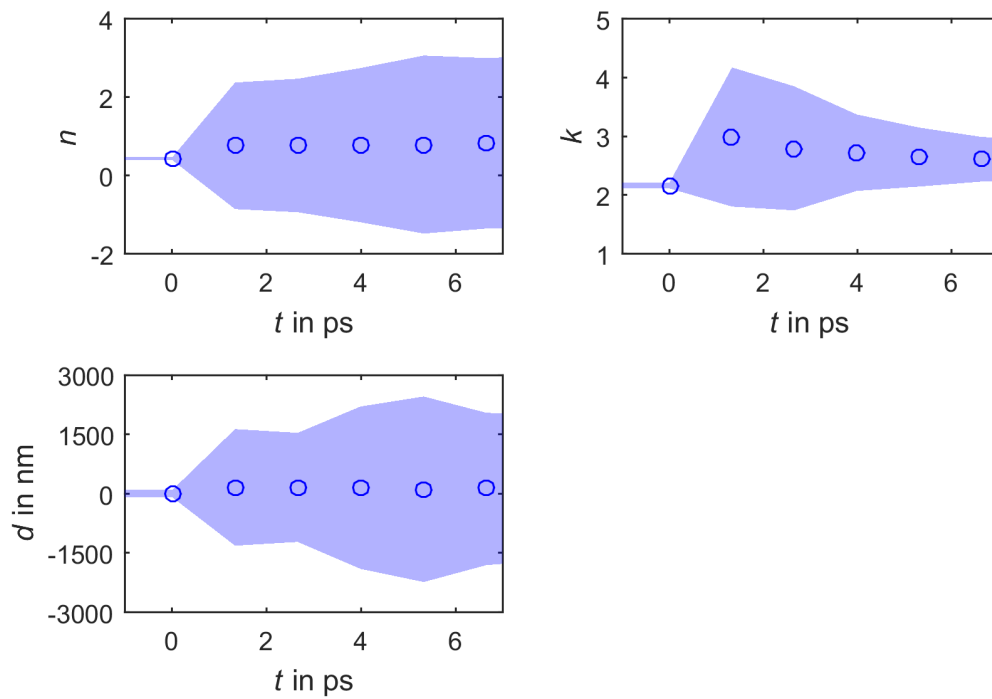


Abbildung A.4: berechnete Brechzahl n (*o.l.*), Extinktionskoeffizient k (*o.r.*) und Schichtdicke d (*u.l.*) der Schmelzfront auf der Goldoberfläche mit dazugehörigen Standardabweichungen nach Anregung durch Pumplaserstrahlung mit der Pulsdauer $\tau_{H,Pump} = 34$ fs und der Fluenz $H_0 = 80 \% \cdot H_{th,gentle} = 1 \frac{J}{cm^2}$

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich meine Arbeit selbstständig verfasst, keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt und die Arbeit noch nicht anderweitig für Prüfungszwecke vorgelegt habe.

Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus Quellen entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht.

Mittweida, 21. April 2017